



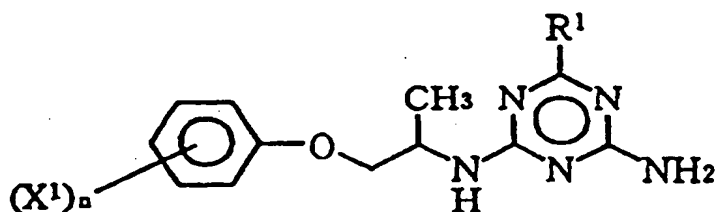
PCT

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

<p>(51) 国際特許分類6 A01N 43/68 // (A01N 43/68, 37:02) (A01N 43/68, 37:10) (A01N 43/68, 43:40) (A01N 43/68, 47:30) (A01N 43/68, 41:06) (A01N 43/68, 33:18) (A01N 43/68, 47:10)</p>	<p>A1</p>	<p>(11) 国際公開番号 WO97/35481</p> <p>(43) 国際公開日 1997年10月2日(02.10.97)</p>
<p>(21) 国際出願番号 PCT/JP97/00926</p> <p>(22) 国際出願日 1997年3月21日(21.03.97)</p> <p>(30) 優先権データ 特願平8/65788 1996年3月22日(22.03.96) JP 特願平8/123818 1996年5月17日(17.05.96) JP 特願平8/123821 1996年5月17日(17.05.96) JP</p> <p>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 出光興産株式会社(IDEMITSU KOSAN CO., LTD.)(JP/JPI) 〒100 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo, (JP)</p> <p>(72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ) 尾川新一郎(OGAWA, Shin-ichiro)(JP/JPI) 平田敏浩(HIRATA, Toshihiro)(JP/JPI) 〒299-02 千葉県袖ケ浦市上泉1280番地 出光興産株式会社内 Chiba, (JP)</p> <p>(74) 代理人 弁理士 中村静男, 外(NAKAMURA, Shizuo et al.) 〒110 東京都台東区台東2丁目24番10号 エスティビル3階 Tokyo, (JP)</p>		<p>(81) 指定国 AL, AM, AU, BB, BG, BR, CA, CN, CZ, EE, FI, GE, HU, IS, KG, KR, LK, LR, LT, LV, MD, MG, MK, MN, MX, NO, NZ, PL, RO, SG, SI, SK, TR, TT, UA, US, UZ, VN, ARIPO特許 (GH, KE, LS, MW, SD, SZ, UG), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), 欧州特許 (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG).</p> <p>添付公開書類 国際調査報告書</p>

(54)Title: HERBICIDAL COMPOSITION

(54)発明の名称 除草剤組成物



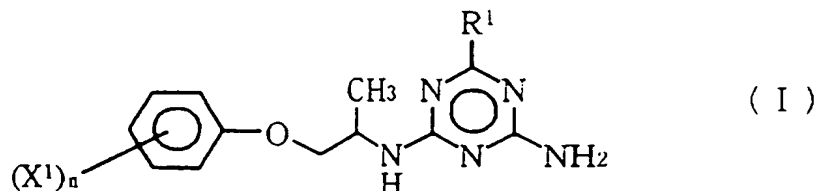
(I)

(57) Abstract

A herbicidal composition comprising as the active ingredients (A) a triazine derivative represented by general formula (I) or a salt thereof and (B) at least one member selected among (b1) phenoxy, benzoic and pyridine herbicides, (b2) urca, sulfonylurea and sulfonamide herbicides, and (b3) dinitroaniline and carbamate herbicides. In said formula (I) X¹, R¹ and n are each as defined in the description. The composition can control a wide variety of weeds, especially broad-leaf and gramineous weeds, efficaciously in a low dose without injury to crops, such as wheat, and lawn.

(57) 要約

(A) 一般式 (I)



(X¹、R¹およびnは明細書で定義されたとおりである。)

で表されるトリアジン誘導体またはその塩と、(B) (b1) フェノキシ系除草剤、ベンゾイック系除草剤およびピリジン系除草剤、(b2) ウレア系除草剤、スルホニルウレア系除草剤およびスルホンアミド系除草剤、並びに(b3) ジニトロアニリン系除草剤およびカーバメート系除草剤から選ばれる少なくとも1種とを、有効成分として含有する除草剤組成物である。

本発明の除草剤組成物は、ムギなどの作物、あるいは芝生に対して薬害を与えることなく、低薬量で広範な雑草、特に広葉雑草やイネ科雑草を効果的に防除することができる。

情報としての用途のみ

PCTに基づいて公開される国際出願をパンフレット第一頁にPCT加盟国を同定するために使用されるコード

AL	アルバニア	EE	エストニア	LR	リベリア	RU	ロシア連邦
AM	アルメニア	ES	スペイン	LS	レソト	SD	スーダン
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LT	リトアニア	SE	スウェーデン
AU	オーストラリア	FR	フランス	LV	ラトヴィア	SG	シンガポール
AZ	アゼルバイジャン	GB	イギリス	MC	モナコ	SI	スロベニア
BB	バハマ	GE	グルジア	MD	モルドバ	SK	スロバキア
BE	ベルギー	GR	ギリシャ	MK	マケドニア	SN	セネガル
BG	ブルガリア	GN	ギニア	UA	ウクライナ	SZ	スワジランド
BR	ブラジル	CR	コロンビア	ML	マリ	TG	トーゴ
BY	ベラルーシ	HU	ハンガリー	MN	モンゴル	TM	トルクメニスタン
CC	ココス(キリング)諸島	IE	アイルランド	MR	モーリタニア	TR	トルコ
CF	中央アフリカ共和国	IT	イタリア	MW	モザンビーク	TT	トリニダード・トバゴ
CG	コンゴ	JP	日本	MX	メキシコ	UG	ウガンダ
CH	スイス	KE	ケニア	NE	ニジェール	US	米国
CI	コートジボワール	KG	キルギスタン	NL	オランダ	VN	ベトナム
CM	カメルーン	KR	朝鮮民主主義人民共和国	NZ	ニュージーランド	YU	ユーゴスラビア
CN	中国	KZ	カザフスタン	PL	ポーランド		
DE	ドイツ	LI	リヒテンシュタイン	PT	ポルトガル		
		LU	ルクセンブルク	RO	ルーマニア		

明 細 書

除草剤組成物

技術分野

本発明は除草剤組成物に関し、さらに詳しくは、ムギなどの作物、あるいは芝生に対して薬害を与えることなく、低薬量で広範な雑草、特に広葉雑草やイネ科雑草を効果的に防除しうる除草剤組成物に関するものである。

背景技術

これまでに種々の除草剤が開発され、農作物の生産性向上および省力化に寄与してきた。しかし、これまで開発された除草剤は、殺草スペクトルが十分に広いとはいえず、難防除雑草が増えてきているのが現状であり、より殺草スペクトルの広い除草剤が求められている。また、環境に対する影響が少なく、低薬量で除草効果の高い除草剤が求められている。

本発明者らは、後記する一般式（I）で表されるトリアジン誘導体またはその塩（以下、トリアジン誘導体（I）という）が、ムギ類および芝生に対して高い安全性を有し、且つ低薬量で除草効果が高い化合物であることを見出し、すでに特許出願を行っている（W096/25404）。

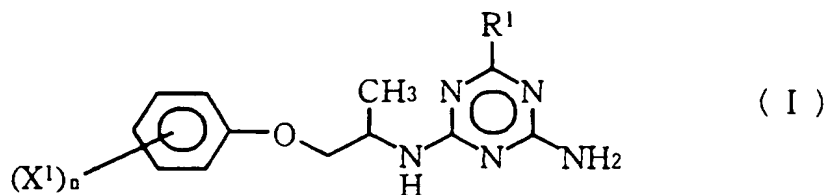
上記トリアジン誘導体（I）は、高い作物－雑草間選択性を有するものであるが、さらに低薬量で、より広範な雑草を防除できる除草剤が求められている。

発明の開示

本発明は、このような状況下で、ムギなどの作物、あるいは芝生に対して薬害を与えることなく、低薬量で広範な雑草、特に広葉雑草やイネ科雑草を効果的に防除することができ、農作物のさらなる生産性の向上および省力化などに寄与しうる除草剤組成物を提供することを目的とするものである。

本発明者らは、上記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、該トリアジン誘導体（I）と 特定の除草剤の中から選ばれた 1 種または 2 種以上とを併用すれば、これらの相乗作用により、その目的を達成しうることを見出し、この知見に基づいて本発明を完成するに至った。

すなわち、本発明は、(A) 一般式 (I)



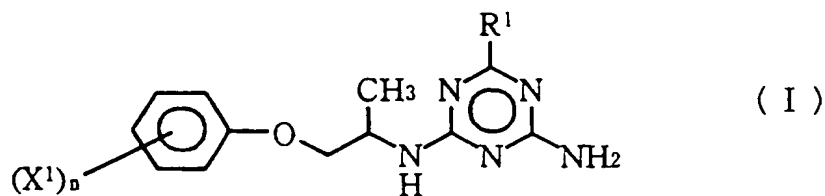
(式中、X¹は直鎖若しくは分岐C₁～C₄アルキル基またはハロゲン原子であり、nは0～4の整数であり、nが2以上の整数である場合、複数のX¹は互いに同一または異なっているもよい。

R¹は直鎖若しくは分岐C₁～C₁₀アルキル基であり、このアルキル基は、C₁～C₄アルコキシ基、ヒドロキシ基の中から選ばれた基1個または同一若しくは異なる基2～4個によって置換されているもよい。)

で表されるトリアジン誘導体またはその塩と、(B) (b1) フェノキシ系除草剤、ベンゾイック系除草剤、およびピリジン系除草剤、(b2) ウレア系除草剤、スルホニルウレア系除草剤およびスルホンアミド系除草剤、並びに(b3) ジニトロアニリン系除草剤およびカーバメート系除草剤からなる群より選択される化合物の少なくとも1種とを、有効成分として含有する除草剤組成物を提供するものである。

発明を実施するための最良の形態

本発明の除草剤組成物においては、第一の有効成分として、(A) 成分である一般式 (I)



で示されるトリアジン誘導体またはその塩が用いられる。

上記一般式 (I) において、X¹は直鎖若しくは分岐C₁～C₄アルキル基または

ハロゲン原子を示す。

ここで、 X^1 が直鎖若しくは分岐 $C_1 \sim C_4$ アルキル基である場合の具体例としては、例えばメチル基、エチル基、 n -プロピル基、 i -プロピル基、 n -ブチル基、 i -ブチル基、 sec -ブチル基、 $tert$ -ブチル基、シクロプロピル基、シクロブチル基が挙げられ、好ましくはメチル基である。

X^1 がハロゲン原子である場合の具体例としては、例えば塩素原子、臭素原子、フッ素原子、ヨウ素原子が挙げられ、好ましくはフッ素原子である。

X^1 の置換位置は、ベンゼン環の2～6位のいずれであってもよく、好ましくは3位または5位あるいはその両方である。

上記一般式(I)において、 n は0～4の整数を示し、好ましくは0、1または2であり、特に好ましくは1または2である。

ここで、 n が2以上の整数である場合、複数の X^1 は互いに同一または異なっているもよい。

上記一般式(I)において、 R^1 は直鎖若しくは分岐 $C_1 \sim C_{10}$ アルキル基であり、このアルキル基は、 $C_1 \sim C_4$ アルコキシ基、及びヒドロキシ基の中から選ばれた基1個または同一若しくは異なる基2～4個によって置換されていてもよい。ここで、 R^1 が、これらの基によって置換されていない、直鎖若しくは分岐 $C_1 \sim C_{10}$ アルキル基である場合の具体例としては、例えば上記 X^1 において説明した $C_1 \sim C_4$ アルキル基に加え、 n -ペンチル基、 i -ペンチル基、 sec -ペンチル基、 $tert$ -ペンチル基、 n -ヘキシル基、 i -ヘキシル基、 sec -ヘキシル基、 $tert$ -ヘキシル基、 n -ヘプチル基、 i -ヘプチル基、 sec -ヘプチル基、 $tert$ -ヘプチル基、 n -オクチル基、 i -オクチル基、 sec -オクチル基、 $tert$ -オクチル基、 n -ノニル基、 i -ノニル基、 sec -ノニル基、 $tert$ -ノニル基、 n -デシル基、 i -デシル基、 sec -デシル基、 $tert$ -デシル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基等が挙げられ、好ましくはメチル基、エチル基、 n -プロピル基、 i -プロピル基、 sec -ブチル基、 $tert$ -ブチル基、 i -ブチル基、 n -ペンチル基、シクロヘキシル基である。

また、 R^1 が $C_1 \sim C_4$ アルコキシ基によって置換されている $C_1 \sim C_{10}$ アルキル

基の場合、置換基である $C_1 \sim C_4$ アルコキシ基の具体例としては、例えばメトキシ基、エトキシ基、 n -プロポキシ基、 i -プロポキシ基、 n -ブトキシ基、 i -ブトキシ基、 $tert$ -ブトキシ基等が挙げられ、好ましくはメトキシ基、 $tert$ -ブトキシ基であり、特に好ましくはメトキシ基である。

R^1 が $C_1 \sim C_4$ アルコキシ基、ヒドロキシル基およびハロゲン原子の中から選ばれた基 2～4 個で置換されている $C_1 \sim C_{10}$ アルキル基である場合、各置換基は互いに同一であってもよいし、異なってもよい。

R^1 が $C_1 \sim C_4$ アルコキシ基及びヒドロキシル基の中から選ばれた基 1～4 個によって置換されている $C_1 \sim C_{10}$ アルキル基である場合の具体例としては、例えば CH_3OCH_2- 基、 $CH_3OC_2H_4-$ 基、 $CH_3OC_3H_6-$ 基、 $CH_3OC_4H_8-$ 基、 $C_2H_5OCH_2-$ 基、 $C_2H_5OC_2H_4-$ 基、 $C_2H_5OC_3H_6-$ 基、 $C_2H_5OC_4H_8-$ 基、 $C_2H_5OC_5H_{10}-$ 基、 $HOCH_2-$ 基、 HOC_2H_4- 基、 HOC_3H_6- 基、 HOC_4H_8- 基、 $(CH_3O)_2CH-$ 基、 $(CH_3O)_2C_2H_3-$ 基、 $(CH_3O)_2C_3H_5-$ 基、 $(CH_3O)_2C_4H_7-$ 基、 $CH_3(OCH_3)CH-$ 基、 $C_2H_5(OCH_3)CH-$ 基、 $CH_3OCH_2(CH_3)CH-$ 基、 $CH_3O(CH_3)_2C-$ 基、 $(CH_3O)_3COCH_2-$ 基、 $CH_2OH(CH_3)_2C-$ 基、 $(CH_3)_2COH-$ 基、 $C_2H_5(OH)CH-$ 基、メトキシ基で置換されたシクロプロピル基、メトキシ基で置換されたシクロブチル基、メトキシ基で置換されたシクロペンチル基、メトキシ基で置換されたシクロヘキシル基、エトキシ基で置換されたシクロペンチル基、エトキシ基で置換されたシクロヘキシル基などが挙げられる。

R^1 は、好ましくは $C_1 \sim C_4$ アルコキシ基及びヒドロキシル基の中から選ばれた基 1～4 個で置換されている直鎖若しくは分岐 $C_1 \sim C_8$ アルキル基である。より好ましくは 1 または 2 個の $C_1 \sim C_4$ アルコキシ基、具体的には 1 または 2 個のメトキシ基、あるいは 1 個のブトキシ基で置換されている直鎖若しくは分岐 $C_1 \sim C_4$ アルキル基、1 個のヒドロキシル基で置換されている直鎖若しくは分岐 $C_1 \sim C_4$ アルキル基である。さらに好ましくは、 R^1 は、1 個のメトキシ基、1 個のヒドロキシル基によって置換された、直鎖若しくは分岐 $C_1 \sim C_4$ アルキル基である。

トリアジン誘導体 (I) には光学異性体が存在し、通常ラセミ体として得られるが、不斉合成などの既知の方法で対掌体の一方のみを得ることも可能である。

本発明のトリアジン誘導体（I）は、ラセミ体であっても、あるいは光学異性体単独であっても除草活性を示すものである。トリアジン誘導体（I）は、上記ラセミ体および上記それぞれの光学異性体を包含するものである。

さらに、トリアジン誘導体（I）は、無機酸または有機酸の塩であっても除草活性成分として使用しうる。

ここで、一般式（I）で表されるトリアジン誘導体と塩を形成しうる酸としては、例えば、塩酸、ヨウ化水素酸、臭化水素酸、フッ化水素酸、硫酸、硝酸、リン酸等の無機酸；および酢酸、メタンスルホン酸、トルエンスルホン酸などのスルホン酸等の有機酸が挙げられる。

トリアジン誘導体（I）の具体例を、下記の表1～6に、化合物A-1～A-24の物性を表7～表9に示す。

表 1

化合物 No.	構 造 式	化 合 物 名
A-1		2-アミノ-4-イソプロピル-6-[2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ]-1, 3, 5-トリアジン
A-2		2-アミノ-4-tert-ブチル-6-[2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ]-1, 3, 5-トリアジン
A-3		2-アミノ-4-sec-ブチル-6-[2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ]-1, 3, 5-トリアジン
A-4		2-アミノ-4-シクロプロピル-6-[2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ]-1, 3, 5-トリアジン

表 2

化合物 No.	構 造 式	化 合 物 名
A-5		2-アミノ-4-tert-ブチル-6- -[2-(3'-フルオロフェノ キシ)-1-メチル-エチルアミ ノ]-1,3,5-トリアジン
A-6		2-アミノ-4-(α-メトキシ -α-メチルエチル)-6-[2 -(3',5'-ジメチルフェノ キシ)-1-メチル-エチルアミ ノ]-1,3,5-トリアジン
A-7		2-アミノ-4-(α-メチル- β-メトキシエチル)-6-[2 -(3',5'-ジメチルフェノ キシ)-1-メチル-エチルアミ ノ]-1,3,5-トリアジン
A-8		2-アミノ-4-(α-メトキシ -n-プロピル)-6-[2-(3',5'-ジメチルフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ] -1,3,5-トリアジン

表 3

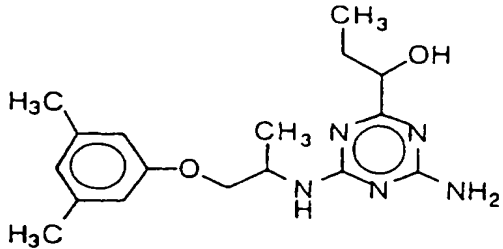
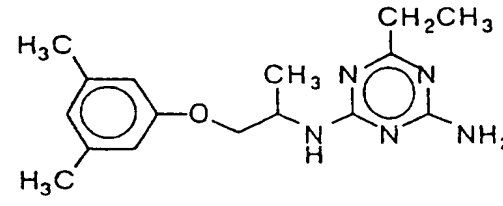
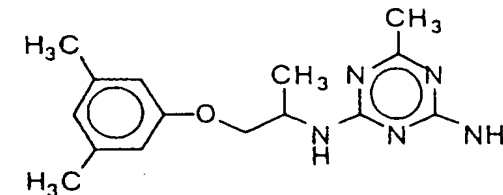
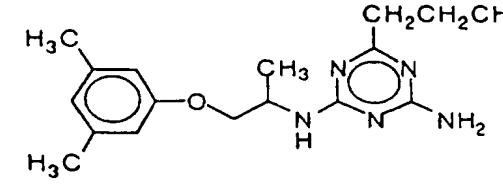
化合物 No.	構 造 式	化 合 物 名
A-9		2-アミノ-4-(α -ヒドロキシ-n-プロピル)-6-[2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ]-1, 3, 5-トリアジン
A-10		2-アミノ-4-エチル-6-[2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ]-1, 3, 5-トリアジン
A-11		2-アミノ-4-メチル-6-[2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ]-1, 3, 5-トリアジン
A-12		2-アミノ-4-n-プロピル-6-[2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ]-1, 3, 5-トリアジン

表 5

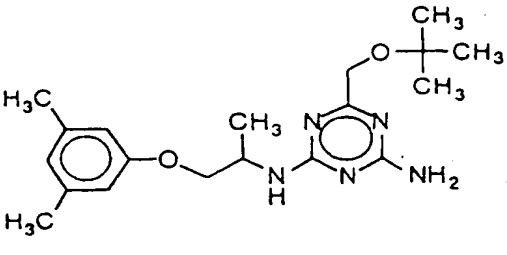
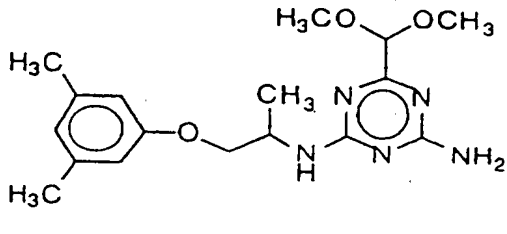
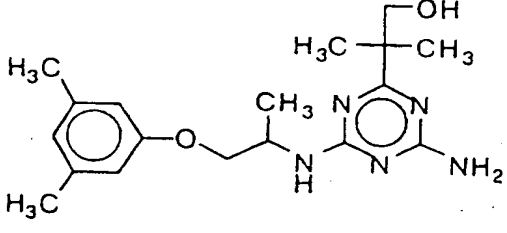
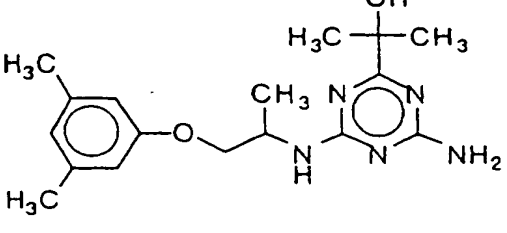
化合物 No.	構 造 式	化 合 物 名
A-17		2-アミノ-4-tert-ブトキシメ チル-6-[2-(3', 5'- ジメチルフェノキシ)-1-メチ ル-エチルアミノ]-1, 3, 5 -トリアジン
A-18		2-アミノ-4-ジメトキシメチ ル-6-[2-(3', 5'-ジ メチルフェノキシ)-1-メチル -エチルアミノ]-1, 3, 5- トリアジン
A-19		2-アミノ-4-(β-ヒドロキ シメチル-α-メチルエチル)- 6-[2-(3', 5'-ジメチ ルフェノキシ)-1-メチル-エ チルアミノ]-1, 3, 5-トリ アジン
A-20		2-アミノ-4-(α-ヒドロキ シ-α-メチルエチル)-6-[2-(3', 5'-ジメチルフェ ノキシ)-1-メチル-エチルア ミノ]-1, 3, 5-トリアジン

表 4

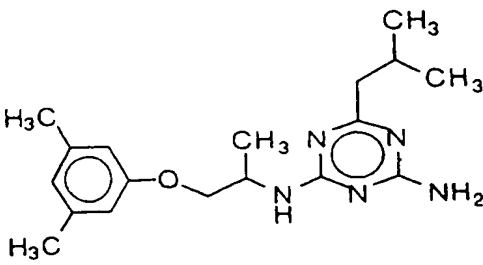
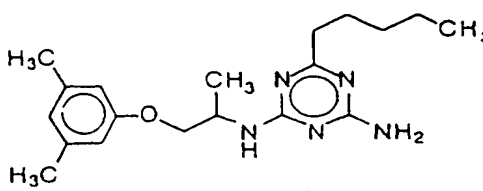
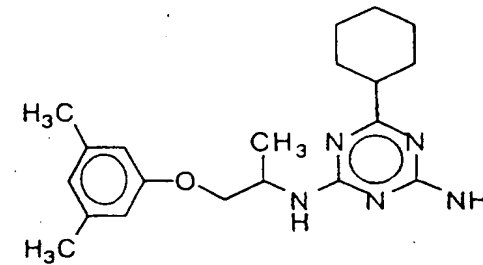
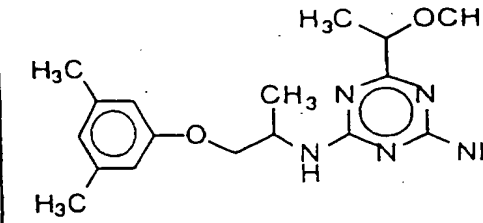
化合物 No.	構 造 式	化 合 物 名
A-13		2-アミノ-4-(β -メチル-n-プロピル)-6-[2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ]-1, 3, 5-トリアジン
A-14		2-アミノ-4-n-ペンチル-6-[2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ]-1, 3, 5-トリアジン
A-15		2-アミノ-4-シクロヘキシル-6-[2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ]-1, 3, 5-トリアジン
A-16		2-アミノ-4-(α -メトキシエチル)-6-[2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ]-1, 3, 5-トリアジン

表 6

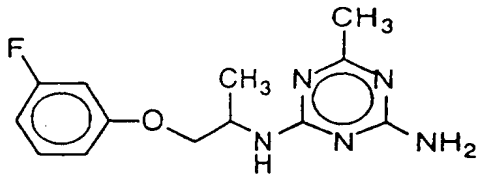
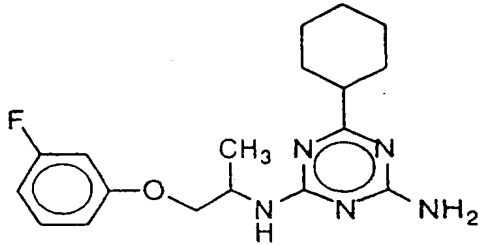
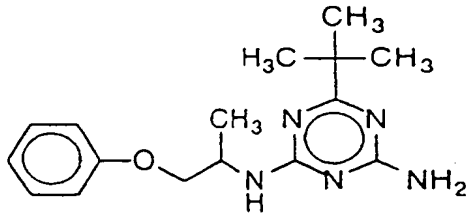
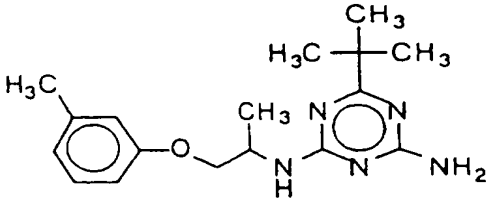
化合物 No.	構 造 式	化 合 物 名
A-21		2-アミノ-4-メチル-6-[2-(3'-フルオロフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ]-1,3,5-トリアジン
A-22		2-アミノ-4-シクロヘキシル-6-[2-(3'-フルオロフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ]-1,3,5-トリアジン
A-23		2-アミノ-4-tert-ブチル-6-[2-フェノキシ-1-メチル-エチルアミノ]-1,3,5-トリアジン
A-24		2-アミノ-4-tert-ブチル-6-[2-(3'-メチルフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ]-1,3,5-トリアジン

表 7

実施例番号	I R (cm ⁻¹)*1 s-トリフィン	¹ H-NMR *2
A-1 *3	1 5 7 0	1.22(6H, d, J=7.2Hz, CH ₃ CHCH ₃), 1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 2.28(6H, s, ArCH ₃ ×2), 2.40-2.90(1H, m, CH ₃ CHCH ₃), 3.75-4.20(2H, m, OCH ₂), 4.25-4.70(1H, m, CHNH), 5.05-5.55(3H, m, NH, NH ₂), 6.45-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)
A-2 *4	1 5 7 0	1.28(9H, s, CCH ₃ ×3), 1.34(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 2.28(6H, s, ArCH ₃ ×2), 3.75-4.20(2H, m, OCH ₂), 4.25-4.65(1H, m, CHNH), 5.10-5.50(3H, m, NH, NH ₂), 6.45-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)
A-3	1 5 9 0	0.91(3H, t, J=8.1Hz, CH ₂ CH ₃), 1.21(3H, d, J=7.2Hz, CH ₂ CHCH ₃), 1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 1.30-1.95(2H, m, CH ₂ CH ₃), 2.29(6H, s, ArCH ₃ ×2), 2.20-2.70(1H, m, CH ₂ CHCH ₃), 3.70-4.20(2H, m, OCH ₂), 4.25-4.65(1H, m, CHNH), 5.00-5.50(3H, m, NH, NH ₂), 6.40-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)
A-4	1 5 7 0	0.80-1.15(4H, m, CHCH ₂ CH ₂), 1.32(3H, d, J=6.8Hz, CHCH ₃), 1.50-1.90(1H, m, CHCH ₂ CH ₂), 2.27(6H, s, ArCH ₃ ×2), 3.75-4.10(2H, m, OCH ₂), 4.20-4.60(1H, m, CHNH), 5.10-5.60(3H, m, NH, NH ₂), 6.45-6.65(3H, m, C ₆ H ₃)
A-5	1 5 6 5	1.25(9H, s, CCH ₃ ×3), 1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 3.75-4.20(2H, m, OCH ₂), 4.25-4.65(1H, m, CHNH), 4.90-5.40(3H, m, NH, NH ₂), 6.40-7.40(4H, m, C ₆ H ₃)
A-6	1 5 5 5	1.37(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 1.51(6H, s, CCH ₃ ×2), 2.28(6H, s, ArCH ₃ ×2), 3.23(3H, s, OCH ₃), 3.80-4.15(2H, m, OCH ₂), 4.20-4.65(1H, m, CHNH), 5.35-5.90(3H, m, NH, NH ₂), 6.40-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)
A-7	1 5 6 5	1.20(3H, t, J=7.2Hz, CH ₂ CHCH ₃), 1.35(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 2.29(6H, s, ArCH ₃ ×2), 2.70-3.10(1H, m, Triazine-CH), 3.20-3.80(2H, m, CH ₂ OCH ₂), 3.34(3H, s, OCH ₃), 3.80-4.15(2H, m, OCH ₂), 4.20-4.65(1H, m, CHNH), 5.10-5.60(3H, m, NH, NH ₂), 6.40-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)
A-8	1 5 7 0	0.98(3H, t, J=6.3Hz, CH ₂ CH ₃), 1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 1.55-2.10(2H, m, CH ₂ CH ₃), 2.27(6H, s, ArCH ₃ ×2), 3.36(3H, s, OCH ₃), 3.65-4.00(1H, m, OCH), 3.75-4.15(2H, m, OCH ₂), 4.20-4.70(1H, m, CHNH), 5.20-5.70(3H, m, NH, NH ₂), 6.40-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)

*1)臭化カリウム錠剤法

*2)溶媒：重クロロホルム、内部標準：テトラメチルシラン (TMS)

*3)融点：86.4℃-88.6℃

*4)融点：107.5℃-110.3℃

表 8

実施例番号	I R (cm ⁻¹)*1 s-トリアジン	¹ H-NMR *2
A-9	1 5 6 0	0.98(3H, t, J=8.1Hz, CH ₂ CH ₃), 1.37(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 1.55-2.15(2H, m, CH ₂ CH ₃), 2.27(6H, s, ArCH ₃ ×2), 3.80-4.15(3H, m, OCH ₂ , OCH), 4.15-4.70(2H, m, OH, CHNH), 4.90-5.60(3H, m, NH, NH ₂), 6.40-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)
A-10	1 5 6 0	1.22(3H, t, J=8.1Hz, CH ₂ CH ₃), 1.32(3H, t, J=7.2Hz, CHCH ₃), 2.27(6H, s, ArCH ₃ ×2), 2.45(2H, q, J=8.1Hz, CH ₂ CH ₃), 3.80-4.05(2H, m, OCH ₂), 4.25-4.60(1H, m, CHNH), 6.40-6.65(3H, m, C ₆ H ₃)
A-11	1 5 7 5	1.35(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 1.98(3H, s, Triazine-CH ₃), 2.27(6H, s, ArCH ₃ ×2), 3.75-4.10(2H, m, OCH ₂), 4.25-4.70(1H, m, CHNH), 5.10-5.60(3H, m, NH, NH ₂), 6.45-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)
A-12	1 5 5 0	0.99(3H, t, J=8.1Hz, CH ₂ CH ₃), 1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 1.50-2.00(2H, m, CH ₂ CH ₃), 2.29(6H, s, ArCH ₃ ×2), 2.20-2.60(2H, m, CH ₂ CH ₂ CH ₃) 3.70-4.10(2H, m, OCH ₂), 4.15-4.70(1H, m, CHNH), 5.00-5.70(3H, m, NH, NH ₂), 6.40-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)
A-13	1 5 6 0	0.97(6H, d, J=6.3Hz, CH ₃ CHCH ₃), 1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃) 2.00-2.40(3H, m, CH ₂ CH), 2.30(6H, s, ArCH ₃ ×2), 3.80-4.15(2H, m, OCH ₂), 4.20-4.65(1H, m, CHNH), 5.05-5.50(3H, m, NH, NH ₂), 6.45-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)
A-14	1 5 5 5	0.90(3H, t, J=7.2Hz, CH ₂ CH ₃), 1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 1.10-1.50(4H, m, CH ₂ CH ₂ CH ₃), 1.50-1.95(2H, m, Triazine-CH ₂ CH ₂), 2.26(6H, s, ArCH ₃ ×2), 2.25-2.65(2H, m, Triazine-CH ₂), 3.70-4.15(2H, m, OCH ₂), 4.20-4.70(1H, m, CHNH), 5.10-5.60(3H, m, NH, NH ₂), 6.40-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)
A-15	1 5 5 5	1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 1.15-2.10(10H, m, CH ₂ ×5), 2.27(6H, s, ArCH ₃ ×2), 2.35-2.60(1H, m, Triazine-CH), 3.75-4.15(2H, m, OCH ₂), 4.20-4.70(1H, m, CHNH), 5.00-5.50(3H, m, NH, NH ₂), 6.40-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)
A-16	1 5 7 5	1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 1.42(3H, d, J=8.1Hz, CH ₂ CHO), 2.26(6H, s, ArCH ₃ ×2), 3.36(3H, s, OCH ₃), 3.80-4.15(2H, m, OCH ₂), 3.95-4.20(1H, m, OCH), 4.20-4.70(1H, m, CHNH), 5.35-6.15(3H, m, NH, NH ₂), 6.40-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)

*1)臭化カリウム錠剤法

*2)溶媒：重クロロホルム、内部標準：テトラメチルシラン (TMS)

表 9

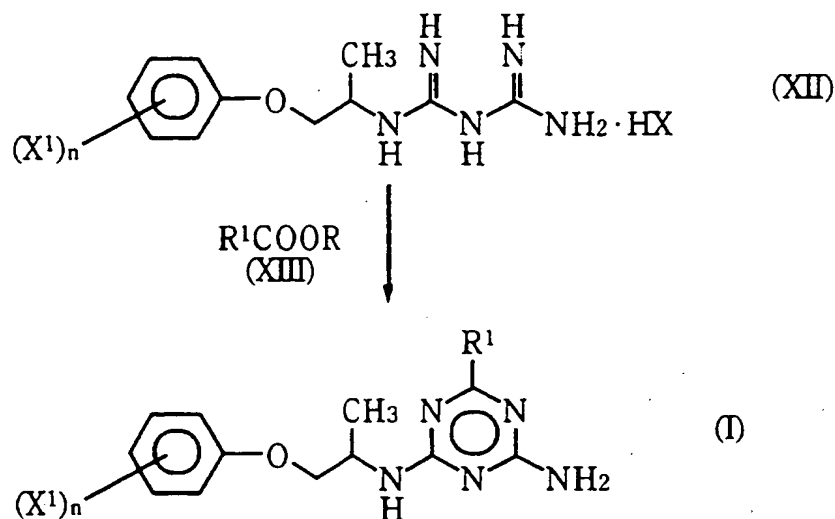
実施例番号	I R (cm ⁻¹)*1 s-トリフィン	¹ H-NMR *2
A-17	1570	1.30(9H, s, CCH ₃ ×3), 1.35(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 2.28(6H, s, ArCH ₃ ×2), 3.75-4.15(2H, m, OCH ₂), 4.25(2H, s, Triazine-CH ₂), 4.25-4.65(1H, m, CHNH), 5.05-5.80(3H, m, NH, NH ₂), 6.45-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)
A-18	1570	1.35(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 2.29(6H, s, ArCH ₃ ×2), 3.44(6H, s, OCH ₃ ×2), 3.80-4.15(2H, m, OCH ₂), 4.20-4.70(1H, m, CHNH), 5.00(1H, s, OCH), 5.60-6.30(3H, m, NH, NH ₂), 6.45-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)
A-19	1570	1.25(6H, s, CCH ₃ ×2), 1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 2.30(6H, s, ArCH ₃ ×2), 3.62(2H, s, CH ₂ OH), 3.80-4.15(2H, m, OCH ₂), 4.25-4.65(1H, m, CHNH), 4.78(1H, s, OH), 5.05-5.60(3H, m, NH, NH ₂), 6.45-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)
A-20	1560	1.38(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 1.47(6H, s, CCH ₃ ×2), 2.30(6H, s, ArCH ₃ ×2), 3.80-4.15(2H, m, OCH ₂), 4.25-4.70(1H, m, CHNH), 4.69(1H, s, OH), 4.90-5.55(3H, m, NH, NH ₂), 6.45-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)
A-21	1570	1.35(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 2.28(3H, s, Triazine-CH ₃), 3.75-4.20(2H, m, OCH ₂), 4.25-4.70(1H, m, CHNH), 5.20-5.70(3H, m, NH, NH ₂), 6.45-7.40(4H, m, C ₆ H ₄)
A-22	1560	1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 1.10-2.10(10H, m, CH ₂ ×5), 2.10-2.60(1H, m, Triazine-CH), 3.75-4.20(2H, m, OCH ₂), 4.20-4.80(1H, m, CHNH), 4.80-5.40(3H, m, NH, NH ₂), 6.45-7.40(4H, m, C ₆ H ₄)
A-23	1570	1.26(9H, s, CCH ₃ ×3), 1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 3.80-4.20(2H, m, OCH ₂), 4.30-4.80(1H, m, CHNH), 5.10-5.75(3H, m, NH, NH ₂), 6.80-7.45(5H, m, C ₆ H ₃)
A-24	1570	1.27(9H, s, CCH ₃ ×3), 1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 2.33(3H, s, ArCH ₃), 3.80-4.20(2H, m, OCH ₂), 4.25-4.80(1H, m, CHNH), 5.05-5.65(3H, m, NH, NH ₂), 6.60-7.25(4H, m, C ₆ H ₄)

*1)臭化カリウム錠剤法

*2)溶媒：重クロロホルム、内部標準：テトラメチルシラン (TMS)

本発明の除草剤組成物の（A）成分であるトリアジン誘導体（I）は、本願出願人により出願された特願平 7-29124 号明細書および国際公開 96-25404 号公報に記載された方法により製造することができる。

即ち、下記の反応式



（反応式中、 X^1 、 n および R^1 は、前記一般式（I）において定義したとおりであり、 X はハロゲン原子であり、 R は $C_1 \sim C_4$ アルキル基である。）に従い、アルキルビグアニドの塩（XII）をエステル類（XIII）と反応させることにより製造することができる。

本反応は、触媒の存在下に行うのが好ましく、本反応で用いることができる触媒としては、例えばナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド、マグネシウムジエトキシド等のアルコキシド類；リン酸ナトリウム、炭酸カリウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等の無機塩基；および 1, 8-ジアザビシクロ[5, 4, 0]-7-ウンデセン（DBU）、1, 5-ジアザビシクロ[4, 3, 0]-5-ノネン（DBN）、トリエチルアミン、ピリジン等の有機塩基が挙げられ、好ましくはナトリウムメトキシドおよびナトリウムエトキシドである。

用いる触媒の量は、通常アルキルビグアニドの塩（XII）に対して 1. 1～10 当量、好ましくは 1. 5～2 当量である。

本反応で用いるエステル類（XIII）の量は、通常アルキルビグアニドの塩（XI I）に対して 1～10 当量、好ましくは 1～2 当量である。

本反応は、溶媒の存在下に行うのが好ましく、本反応で用いることができる溶媒としては、例えばメタノール、エタノール、イソプロパノール等のアルコール類；アセトン、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン類；*n*-ヘキサン、*n*-ヘプタン、*n*-デカン等の脂肪族炭化水素類；ベンゼン、デカリン、アルキルナフタレン等の環状炭化水素類；四塩化炭素、二塩化メチレン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン等の塩化炭化水素類；およびテトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル類などが挙げられ、好ましくはアルコール類であり、特に好ましくはメタノールおよびエタノールである。

本反応では、エステル類 (XIII) の加水分解を防ぐために、脱水剤を使用することができる。本発明の方法において用いることができる脱水剤としては、例えばモレキュラーシーブ、無水硫酸カルシウム、無水硫酸ナトリウム、炭酸ナトリウム、酸化カルシウム、酸化アルミニウム、硫酸マグネシウム、炭酸カリウム、酸化バリウム等が挙げられ、モレキュラーシーブ、無水硫酸カルシウムが特に好ましい。脱水剤の量は、アルキルビグアニドの塩 (XII) に対して 10 から 200 重量%であり、好ましくは 50 ~ 100 重量%である。

本反応の反応温度は、通常 -10 ~ 150 °C であり、好ましくは -10 ~ 120 °C である。反応時間は、通常 2 ~ 30 時間であるが、10 ~ 15 時間程度が好ましい。

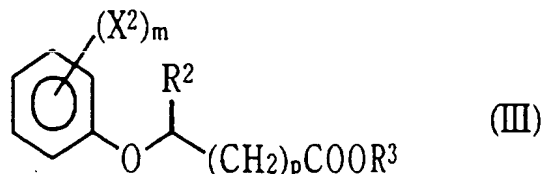
反応終了後、常法に従い、反応混合物を水に注加し、酢酸エチル等の有機溶媒で目的物を抽出し、得られた有機層を無水硫酸ナトリウム等の脱水剤で脱水した後、有機溶媒を減圧下に留去する等の手段により除去する。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー等の手段により精製することにより目的のトリアジン誘導体 (I) を結晶として単離することができる。

本発明の除草剤組成物においては、第二の有効成分として、(B) 成分である (b1) ~ (b3) の 4 グループに属する除草剤が用いられる。次に、この (B) 成分について、各グループ別に説明する。

(b1) グループ

この (b1) グループに属する除草剤は、フェノキシ系除草剤、ベンゾイック系除草剤およびピリジン系除草剤である。

この (b 1) グループに属する除草剤の中のフェノキシ系除草剤は、好ましくは、下記一般式 (III) によって表される化合物 (以下、フェノキシ系除草剤 (III) という) である。

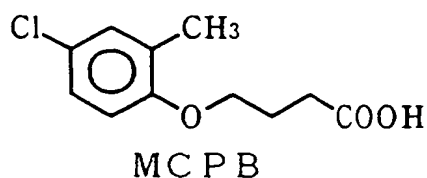
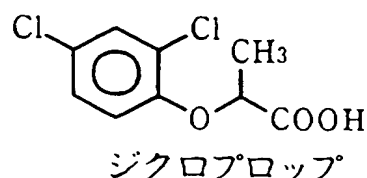
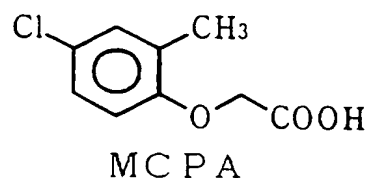
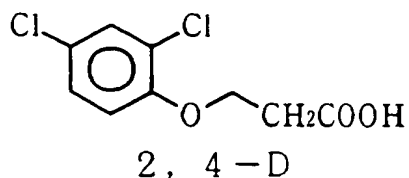


(式中、 X^2 はハロゲン原子またはハロゲン原子で置換されていてもよい直鎖若しくは分岐 $C_1 \sim C_4$ アルキル基を表し、 m は 0 ～ 5 の整数を表し、 m が 2 以上の整数を表す場合、複数の X^2 は互いに同一でも異なってもよい； R^2 は、水素原子または直鎖若しくは分岐 $C_1 \sim C_4$ アルキル基を表し； R^3 は、水素原子または直鎖若しくは分岐 $C_1 \sim C_4$ アルキル基を表し、 p は 0 ～ 4 の整数を表す)

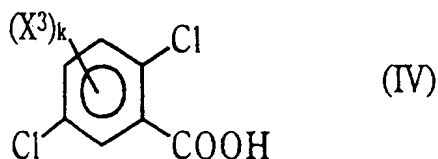
上記一般式 (III) において、 X^2 がハロゲン原子である場合の具体例、および R^2 および R^3 が直鎖若しくは分岐 $C_1 \sim C_4$ アルキル基である場合の具体例は、前記一般式 (I) において説明したのと同様であり、ここでは省略する。 X^2 は好ましくは塩素原子である。 R^2 は好ましくは水素原子である。 R^3 は好ましくは水素原子である。

上記一般式 (III) において、 X^2 がハロゲン原子で置換されていてもよい直鎖若しくは分岐 $C_1 \sim C_4$ アルキル基である場合の具体例としては、例えば、 $-CH_2F$ 基、 $-CH_2Cl$ 基、 $-CF_3$ 基、 $-CCl_3$ 基等が挙げられる。

本発明で使用するフェノキシ系除草剤 (III) の具体例としては、下記のものが挙げられる。



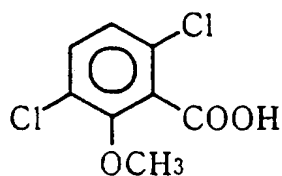
また、(b1) グループに属する除草剤の中のベンゾイック系除草剤は、好ましくは、一般式 (IV) によって表される化合物 (以下、ベンゾイック系除草剤 (IV) という) である。



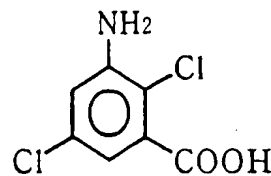
(式中、 X^3 はハロゲン原子、直鎖若しくは分岐 $C_1 \sim C_4$ アルコキシ基、アミノ基またはニトロ基を表し、 k は 0 ~ 3 の整数を表し、 k が 2 以上の整数を表す場合、複数の X^3 は互いに同一でも異なってもよい)

上記一般式 (IV) において、 X^3 がハロゲン原子または直鎖若しくは分岐 $C_1 \sim C_4$ アルコキシ基である場合の具体例は、前記一般式 (I) において説明したのと同様であり、ここでは省略する。 X^3 は好ましくは塩素原子、メトキシ基またはアミノ基であり、 k は好ましくは 1 または 2 である。

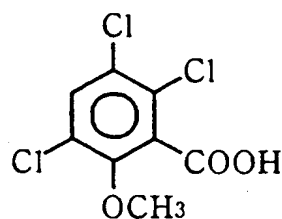
本発明で使用されるベンゾイック系除草剤 (IV) の具体例としては、下記のもの挙げられる。



ダイカンバ

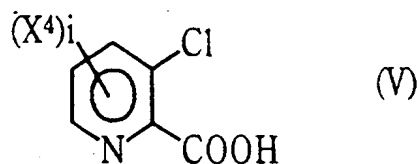


アミベン

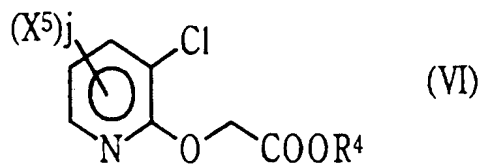


トリカンバ

さらに、(b1) グループに属する除草剤の中のピリジン系除草剤は、好ましくは、一般式 (V) によって表される化合物 (以下、ピリジン系除草剤 (V) という)



(式中、 X^4 はハロゲン原子またはアミノ基を表し、 i は 0～3 の整数を表し、 i が 2 以上の整数を表す場合、複数の X^4 は互いに同一でも異なってもよい。) ; または、一般式 (VI) によって表される化合物 (以下、ピリジン系除草剤 (VI) という) である。

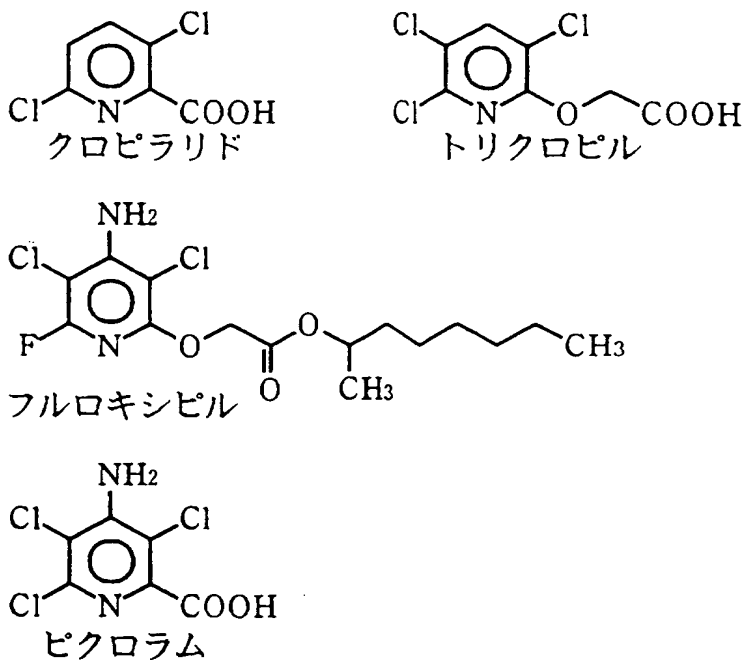


(式中、 X^5 はハロゲン原子またはアミノ基を表し、 j は 0～3 の整数を表し、 j が 2 以上の整数を表す場合、複数の X^5 は互いに同一でも異なってもよく ; R^4 は水素原子または直鎖若しくは分岐 $C_1 \sim C_{10}$ アルキル基を表す)

上記一般式 (V) または (VI) において、 X^4 および X^5 がハロゲン原子である場

合の具体例、および R^4 が直鎖若しくは分岐 $C_1 \sim C_{10}$ アルキル基である場合の具体例については、前記一般式(I)で説明したのと同様であり、ここでは省略する。 X^4 は好ましくは塩素原子またはアミノ基であり、 i は好ましくは1～3である。 X^5 は好ましくは塩素原子、フッ素原子またはアミノ基であり、 j は好ましくは2または3である。 R^4 は好ましくは α -メチル-ヘプチル基である。

本発明で使用されるピリジン系除草剤(V)および(VI)の具体例としては、下記のもの挙げられる。

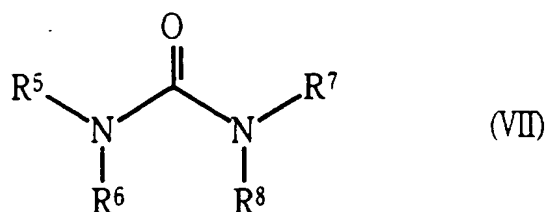


本発明で使用されるこの(b1)グループのフェノキシ系除草剤、ベンゾイック系除草剤およびピリジン系除草剤は、市販品として入手し得るか、または当該技術分野で公知の方法により製造され得る。

(b2) グループ

この(b2)グループに属する除草剤は、ウレア系除草剤、スルホニルウレア系除草剤およびスルホンアミド系除草剤である。

この(b2)グループに属する除草剤の中のウレア系除草剤は、好ましくは、下記一般式(VII)によって表される化合物(以下、ウレア系除草剤(VII)という)である。



(式中、 R^5 は任意に置換されたフェニル基または芳香族複素環式基を表し、 R^6 は水素原子または直鎖もしくは分岐 $\text{C}_1 \sim \text{C}_6$ アルキル基を表し、 R^7 は直鎖または分岐 $\text{C}_1 \sim \text{C}_6$ アルキル基を表し、 R^8 は水素原子、直鎖もしくは分岐 $\text{C}_1 \sim \text{C}_6$ アルキル基または直鎖もしくは分岐 $\text{C}_1 \sim \text{C}_6$ アルコキシ基を表す)

上記一般式 (VII) において、 R^5 が未置換の芳香族複素環式基である場合の具体例としては、チアジアゾール、ベンゾチアジアゾール、イソキサゾール、オキサジアゾロン等の残基が挙げられる。

R^5 が置換されたフェニル基または芳香族複素環式基を表す場合の置換基の具体例としては、ハロゲン原子、 $\text{C}_1 \sim \text{C}_4$ アルキル基、 $\text{C}_1 \sim \text{C}_4$ ハロアルキル基、 $\text{C}_1 \sim \text{C}_4$ ハロアルコキシ基、 $\text{C}_1 \sim \text{C}_4$ アルコキシ基、 $\text{C}_1 \sim \text{C}_4$ ハロアルキルチオ基、 $\text{C}_1 \sim \text{C}_4$ ハロアルケニルオキシ基、置換アリールオキシ基、 $\text{C}_1 \sim \text{C}_4$ アルキルアミノカルボニルオキシ基、 $\text{C}_1 \sim \text{C}_4$ アルキルスルホニル基、 $\text{C}_1 \sim \text{C}_4$ アルキルアミノスルホニル基、ベンジルオキシ基等が挙げられる。

R^6 、 R^7 または R^8 が直鎖または分岐 $\text{C}_1 \sim \text{C}_6$ アルキル基である場合の具体例は、前記一般式 (I) において説明した $\text{C}_1 \sim \text{C}_4$ アルキル基の具体例に加え、 n -ペンチル基、 i -ペンチル基、 sec -ペンチル基、 $tert$ -ペンチル基、 n -ヘキシル基、 i -ヘキシル基、 sec -ヘキシル基、 $tert$ -ヘキシル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基が挙げられる。

R^8 が直鎖もしくは分岐 $\text{C}_1 \sim \text{C}_6$ アルコキシ基である場合の具体例としては、上記一般式 (I) において説明した $\text{C}_1 \sim \text{C}_4$ アルコキシ基の具体例に加え、 n -ペントキシ基、 i -ペントキシ基、 sec -ペントキシ基、 $tert$ -ペントキシ基、 n -ヘキソキシ基、 i -ヘキソキシ基、 sec -ヘキソキシ基、 $tert$ -ヘキソキシ基、シクロペントキシ基、シクロヘキソキシ基が挙げられる。

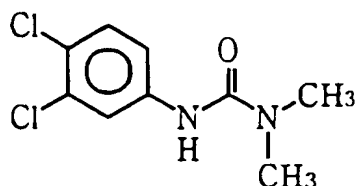
R^5 は、好ましくは3,4-ジクロロフェニル基、3-クロロ-4-メチルフェニル基、4- i -プロピルフェニル基またはベンゾチアジアゾール基である。

R⁶は、好ましくは水素原子またはメチル基である。

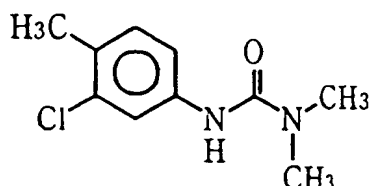
R⁷は、好ましくはメチル基またはメトキシ基である。

R⁸は、好ましくは水素原子またはメチル基である。

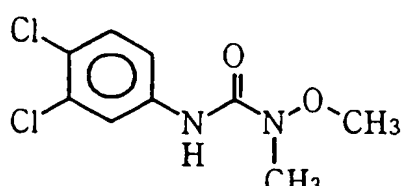
本発明で使用されるウレア系除草剤 (VII) の具体例としては、下記のものが挙げられる。



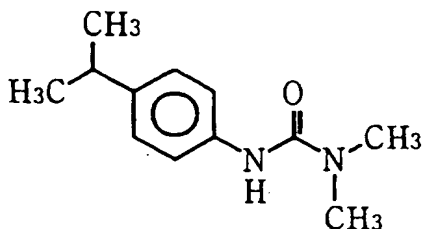
デュウロン



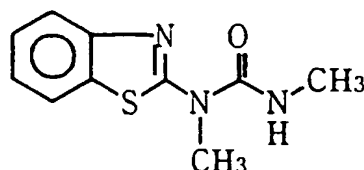
クロロトルロン



リニュロン

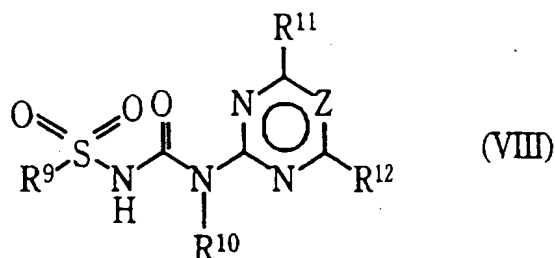


イソプロチュロン



メタベンズチアズロン

また、(b2) グループに属する除草剤の中のスルホニルウレア系除草剤は、好ましくは、下記一般式 (VIII) によって表される化合物 (以下、スルホニルウレア系除草剤 (VIII) という) である。



(VIII)

(式中、Zは窒素原子または炭素原子を表し、R⁹は任意に置換されたフェニル基、芳香族複素環式基またはスルホンアミド基を表し、R¹⁰は水素原子または直鎖もしくは分岐C₁~C₆アルキル基を表し、R¹¹は水素原子、直鎖もしくは分岐C₁~C₆アルキル基、直鎖もしくは分岐C₁~C₆アルコキシ基または直鎖もしくは分岐C₁~C₆ハロアルコキシ基を表し、R¹²は水素原子、直鎖もしくは分岐C₁~C₆アルキル基、直鎖もしくは分岐C₁~C₆アルコキシ基または直鎖もしくは分岐C

($C_1 \sim C_6$ ハロアルコキシ基を表す)

上記一般式 (VIII) において、 R^9 が未置換の芳香族複素環式基である場合の具体例、 R^{10} 、 R^{11} または R^{12} が直鎖または分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基である場合の具体例、および R^{11} 、 R^{12} が直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基を表す場合の具体例は、前記一般式 (VII) で説明したのと同様であり、ここでは省略する。

R^9 が置換されたフェニル基、芳香族複素環式基またはスルホンアミド基を表す場合の置換基の具体例としては、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_4$ アルキル基、 $C_1 \sim C_4$ アルコキシカルボニル基、ハロゲン原子で置換されていてもよい $C_1 \sim C_4$ アルコキシ基、 $C_1 \sim C_4$ アルキルスルホニル基、 $C_1 \sim C_4$ アルキル基で置換されていてもよいカルバモイル基等が挙げられる。

R^{11} 、 R^{12} が直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ ハロアルコキシ基を表す場合の具体例としては、前記一般式 (VII) で説明した直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基が 1 個またはそれ以上のハロゲン原子で置換されたものが挙げられる。

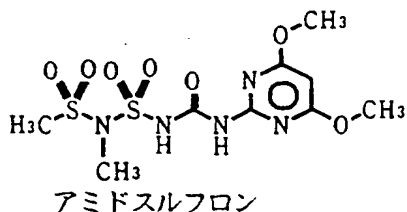
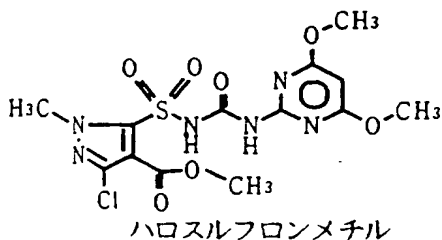
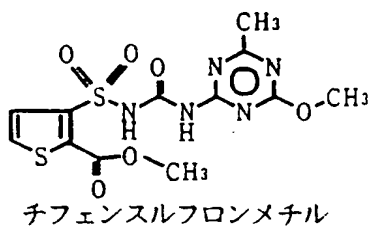
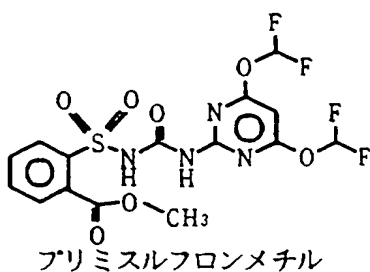
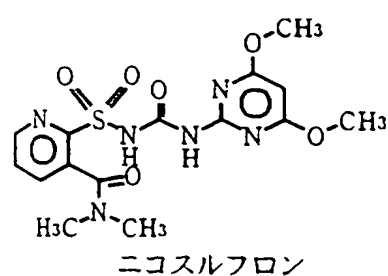
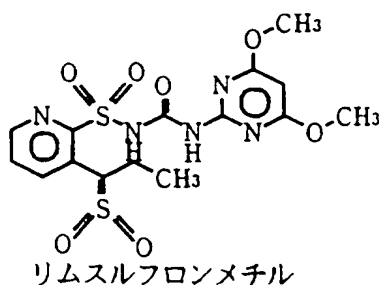
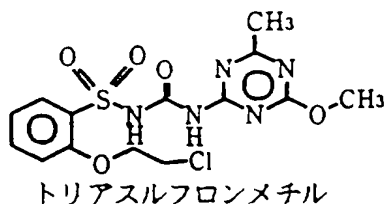
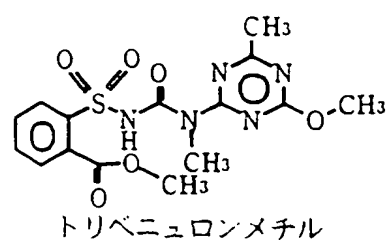
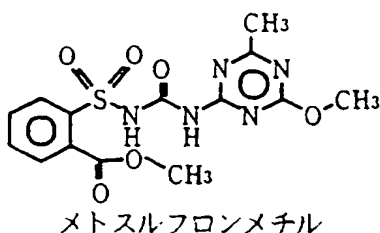
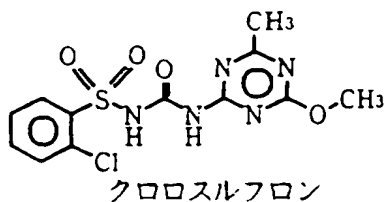
R^9 は、好ましくは o -クロロフェニル基、 o -メトキシカルボニルフェニル基、 p -クロロエトキシフェニル基、3-エチルスルホニルピリジン-2-イル基、3-ジメチルアミノカルボニルピリジン-2-イル基、2-メトキシカルボニルチオフェン-3-イル基、1-メチル-3-クロロ-4-メトキシカルボニルイミダゾリン-5-イル基またはメチルスルホニル-メチルアミノ基である。

R^{10} は、好ましくは水素原子またはメチル基である。

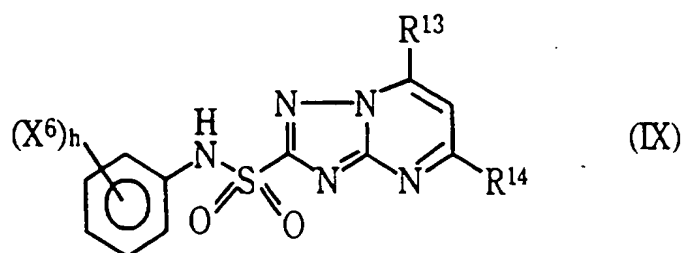
R^{11} は、好ましくはメチル基、メトキシ基またはジフルオロメトキシ基である。

R^{12} は、好ましくはメトキシ基またはジフルオロメトキシ基である。

本発明で使用するスルホニルウレア系除草剤 (VIII) の具体例としては、下記のもの挙げられる。



さらに、(b2) グループに属する除草剤の中のスルホンアミド系除草剤は、好ましくは、下記一般式 (IX) によって表される化合物 (以下、スルホンアミド系除草剤 (IX) という) である。



(式中、X⁶は直鎖もしくは分岐C₁~C₆アルキル基またはハロゲン原子を表し、

hは0～4の整数を表し、hが2以上の整数を表す場合、複数の X^6 は互いに同一でも異なってもよく； R^{13} は水素原子、直鎖もしくは分岐 $C_1\sim C_6$ アルキル基または直鎖もしくは分岐 $C_1\sim C_6$ アルコキシ基を表し、 R^{14} は水素原子、直鎖もしくは分岐 $C_1\sim C_6$ アルキル基または直鎖もしくは分岐 $C_1\sim C_6$ アルコキシ基を表す)

X^6 、 R^{13} 、 R^{14} が直鎖もしくは分岐 $C_1\sim C_6$ アルキル基である場合の具体例および R^{13} 、 R^{14} が直鎖もしくは分岐 $C_1\sim C_6$ アルコキシ基である場合の具体例は、前記一般式(VII)で説明したのと同様であり、ここでは省略する。

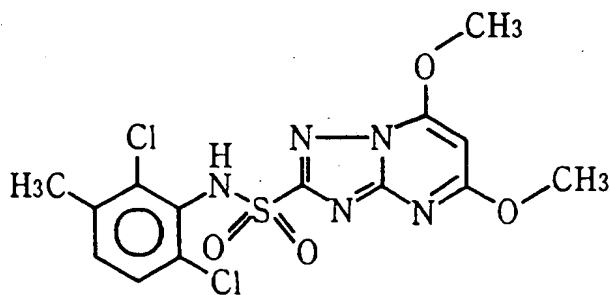
X^6 は、好ましくはメチル基、塩素原子またはフッ素原子である。

hは、好ましくは1または2である。

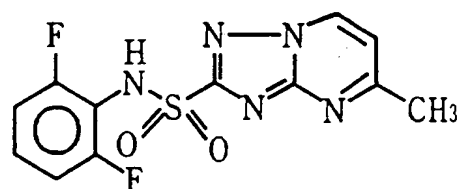
R^{13} は、好ましくは水素原子またはメトキシ基である。

R^{14} は、好ましくはメチル基またはメトキシ基である。

本発明で使用するスルホンアミド系除草剤(IX)の具体例としては、下記のものが挙げられる。



メトスラム



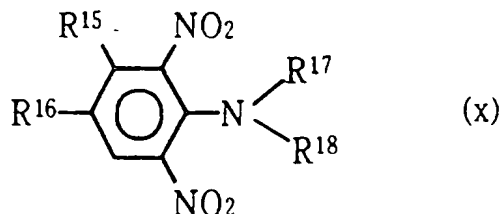
フルメトスラム

本発明で使用するこの(b2)グループのウレア系除草剤、スルホニルウレア系除草剤およびスルホンアミド系除草剤は、市販品として入手し得るか、または当該技術分野で公知の方法により製造され得る。

(b3) グループ

この(b3)グループに属する除草剤は、ジニトロアニリン系除草剤およびカーバメート系除草剤である。

この(b3)グループに属する除草剤の中のジニトロアニリン系除草剤は、好ましくは、下記一般式(X)によって表される化合物(以下、ジニトロアニリン系除草剤(X)という)である。



(式中、 R^{15} は水素原子、アミノ基または直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基を表し、 R^{16} は直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基またはスルホンアミド基を表し、 R^{17} は水素原子、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルケニル基または直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基を表し、 R^{18} は水素原子、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルケニル基または直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基を表す)

上記一般式 (X) において、 R^{15} 、 R^{16} 、 R^{17} 、 R^{18} が、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基を表す場合の具体例としては、前記一般式 (I) 中の X^1 において説明した $C_1 \sim C_4$ アルキル基の具体例に加え、*n*-ペンチル基、*i*-ペンチル基、*sec*-ペンチル基、*tert*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*i*-ヘキシル基、*sec*-ヘキシル基、*tert*-ヘキシル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基が挙げられる。

上記一般式 (X) において、 R^{16} 、 R^{17} 、 R^{18} が直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基を表す場合の具体例としては、前記一般式 (I) 中の R^1 において説明した $C_1 \sim C_4$ アルコキシ基の具体例に加え、*n*-ペントキシ基、*i*-ペントキシ基、*sec*-ペントキシ基、*tert*-ペントキシ基、*n*-ヘキソキシ基、*i*-ヘキソキシ基、*sec*-ヘキソキシ基、*tert*-ヘキソキシ基、シクロペントキシ基、シクロヘキソキシ基が挙げられる。

上記一般式 (X) において、 R^{16} が直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基を表す場合の具体例としては、上記 R^{16} 、 R^{17} 、 R^{18} について説明した直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基が1個またはそれ以上のハロゲン原子で置換されたものが挙げられる。

上記一般式 (X) において、 R^{17} 、 R^{18} が直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルケニル

基を表す場合の具体例としては、ビニル基、プロペニル基、ブテニル基、ペンテニル基、ヘキセニル基が挙げられる。

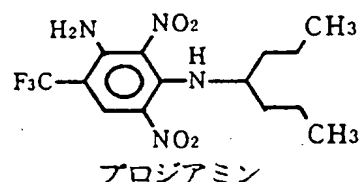
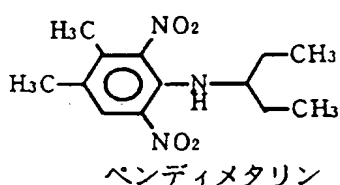
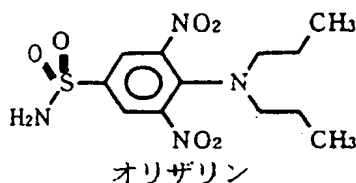
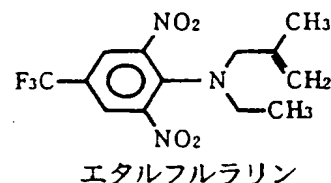
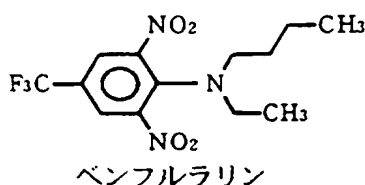
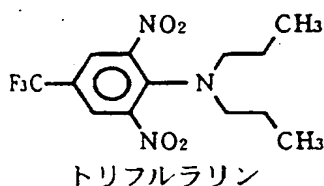
R^{15} は、好ましくは水素原子、メチル基またはアミノ基である。

R^{16} は、好ましくはメチル基、トリフルオロメチル基またはスルホンアミド基である。

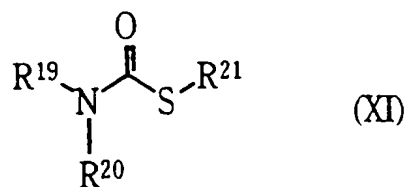
R^{17} は、好ましくはn-プロピル基、n-ブチル基、2-メチル-プロペニル基または1-エチルプロピル基である。

R^{18} は、好ましくは水素原子、エチル基またはn-プロピル基である。

本発明で使用されるジニトロアニリン系除草剤(X)の具体例としては、下記のものが挙げられる。



また、(b3)グループに属する除草剤の中のカーバメート系除草剤は、好ましくは、下記一般式(XI)によって表される化合物(以下、カーバメート系除草剤(XI)という)である。



(式中、 R^{19} は水素原子または直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基を表し、 R^{20} は水素原子または直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基を表し、 R^{21} は任意に置換されたフェニル基、 $C_7 \sim C_{12}$ アルキル基もしくは芳香族複素環式基、直鎖

もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基または直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ ハロアルケニル基を表す)

上記一般式 (XI) において、 R^{19} 、 R^{20} 、 R^{21} が直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基を表す場合の具体例、並びに R^{21} が直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基を表す場合の具体例および直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基を表す場合の具体例は、前記一般式 (X) で説明したのと同様であり、ここでは省略する。

上記一般式 (XI) において、 R^{21} が、未置換の $C_7 \sim C_{12}$ アラルキル基を表す場合の具体例としては、ベンジル基等が挙げられる。

上記一般式 (XI) において、 R^{21} が置換されたフェニル基、 $C_7 \sim C_{12}$ アラルキル基もしくは芳香族複素環式基を表す場合の置換基の具体例としては、ハロゲン原子等が挙げられる。

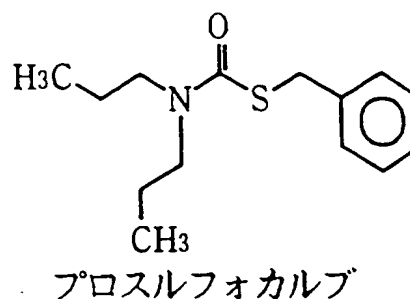
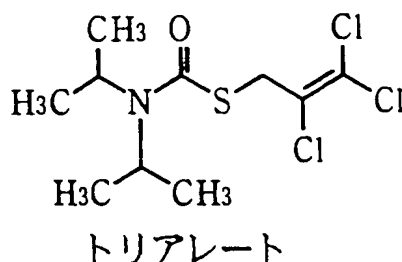
上記一般式 (XI) において、 R^{21} が直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ ハロアルケニル基を表す場合の具体例としては、上記一般式 (X) の R^{17} 、 R^{18} について説明した直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルケニル基が 1 個またはそれ以上のハロゲン原子で置換されたものが挙げられる。

R^{19} は、好ましくは n -プロピル基または i -プロピル基である。

R^{20} は、好ましくは n -プロピル基または i -プロピル基である。

R^{21} は、好ましくは 2, 3, 3-トリクロロ-2-プロペニル基またはベンジル基である。

本発明で使用されるカーバメート系除草剤 (XI) の具体例としては、下記のものが挙げられる。



本発明で使用されるこの (b3) グループのジニトロアニリン系除草剤および

カーバメート系除草剤は、市販品として入手し得るか、または当該技術分野で公知の方法により製造され得る。

本発明の除草剤組成物においては、(B)成分として、前記(b1)～(b3)グループの中から、適宜1種選び用いてもよいし、2種以上を選び組み合わせて用いてもよい。

本発明の除草剤組成物は、(A)成分の前記トリアジン誘導体(I)と(B)成分との混合物(以下、有効成分混合物と記す)を、溶媒などの液状担体または鉱物質微粉などの固体担体と混合し、水和剤、乳剤、粉剤、粒剤などの形態に製剤化して使用することができる。また、本発明の除草剤組成物は、前記(A)成分および(B)成分を各々液状担体または固体担体と混合して別々に製剤化した後、二つの製剤を混合することにより製造してもよい。製剤化に際して乳化性、分散性、展着性などを付与するために界面活性剤を添加し得る。

本発明の除草剤組成物においては、(A)成分トリアジン誘導体(I)と(B)成分との配合割合は、作物の種類、防除対象となる雑草の種類、気候等の条件および(B)成分の除草剤の種類などにより、適宜決定される。例えば、(B)成分が(b1)グループである場合、好ましくは重量比100:1～1:500、より好ましくは10:1～1:10、(B)成分が(b2)グループのウレア系除草剤の場合、好ましくは重量比10:1～1:500、より好ましくは1:1～1:100、(B)成分が(b2)グループのスルホニルウレア系除草剤の場合、好ましくは重量比100:1～1:10、より好ましくは100:1～1:1、(B)成分が(b2)グループのスルホンアミド系除草剤の場合、好ましくは重量比10:1～1:100、より好ましくは1:1～1:10、(B)成分が(b3)グループである場合、好ましくは重量比1:1～1:1000、より好ましくは1:1～1:100である。

本発明の除草剤組成物を水和剤の形態で用いる場合、通常は有効成分混合物10～55重量%、固体担体40～88重量%および界面活性剤2～5重量%の割合で配合して組成物を調製し、これを用いればよい。

また、乳剤の形態で用いる場合、通常は有効成分混合物20～50重量%、溶剤35～75重量%および界面活性剤5～15重量%の割合で配合して調製すれ

ばよい。

また、粉剤の形態で用いる場合、通常は有効成分混合物 1～15 重量%、固体担体 80～97 重量%および界面活性剤 2～5 重量%の割合で配合して調製すればよい。

さらに、粒剤の形態で用いる場合、通常は有効成分混合物 1～15 重量%、固体担体 80～97 重量%および界面活性剤 2～5 重量%の割合で配合して調製すればよい。

ここで固体担体としては鉱物質の微粉が用いられ、この鉱物質の微粉としては、例えばケイソウ土、消石灰などの酸化物、リン灰石などのリン酸塩、セッコウなどの硫酸塩、タルク、パイロフェライト、クレー、カオリン、ベントナイト、酸性白土、ホワイトカーボン、石英粉末、ケイ石粉などのケイ酸塩などを挙げることができる。

また、溶剤としては有機溶媒が用いられ、具体的にはベンゼン、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素、o-クロロトルエン、トリクロロエタン、トリクロロエチレンなどの塩素化炭化水素、シクロヘキサノール、アミルアルコール、エチレングリコールなどのアルコール、イソホロン、シクロヘキサノン、シクロヘキセニルシクロヘキサノンなどのケトン、ブチルセロソルブ、ジエチルエーテル、メチルエチルエーテルなどのエーテル、酢酸イソプロピル、酢酸ベンジル、フタル酸メチルなどのエステル、ジメチルホルムアミドなどのアミドあるいはこれらの混合物を挙げるることができる。

界面活性剤としては、アニオン型、ノニオン型、カチオン型あるいは両性イオン型（アミノ酸、ベタインなど）のいずれを用いることもできる。

さらに、本発明の除草剤組成物は、必要に応じて、他の除草活性成分、殺虫剤、殺菌剤、植物生長調節剤、肥料などを含有することができる。

本発明の除草剤組成物は、例えば、雑草の発芽前又は発芽後に、雑草またはその生育地に施用される。

施用手段は、栽培植物および使用環境により異なるが、例えば、噴霧、散水、散布、注水等であり得る。

本発明の除草剤組成物は、例えば、イネ、コムギ、オオムギ、トウモロコシ、

エンバク、ソルガム等のイネ科植物、ダイズ、ワタ、ビート、ヒマワリ、ナタネ等の広葉作物の栽培において有用であり、その他果樹、果菜類、根菜類、葉菜類等の野菜や芝生等にも有用である。

本発明の除草剤組成物は、例えば、オオイヌノフグリ、スミレ、イヌタデ、ヤエムグラ、カミツレ、オドリコソウ、ヒナゲシ、ノスズメノテッポウ、スズメノカタビラ、野生エンバク、イチビ、オナモミ、アサガオ、シロザ、アオビユ、チヨウセンアサガオ、イヌホウズキ、エノコログサ、メヒシバ、オニノゲシ、セイヨウタンポポ、シャッターケーン、ノビユ、コナギ、キカシグサ、アゼナ、ミゾハコベ、イヌホタルイ、タマガヤツリ、マツバイ、ミズガヤツリ、ウリカワ、オモダカ等の雑草の防除に有用である。

このように本発明の除草剤組成物は、ムギなどの作物、あるいは芝生に対して薬害を及ぼすことなく、低薬量で広範な雑草、特に広葉雑草やイネ科雑草を効果的に防除することができ、農作物のさらなる生産性の向上および省力化などに寄与することができる。

以下、実施例により本発明を具体的に説明するが、本発明は、これらの例によってなんら限定されるものではない。

(参考例1) 化合物A-4 (トリアジン誘導体(I)) の製造:

特開昭63-264465号公報に記載の方法を用いて合成した2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ) イソプロピルビグアニド塩酸塩5.00g (16.7 mmol) に、室温で攪拌しながらナトリウムメトキシド28重量%メタノール溶液9.66g (50.1 mmol) を加え、更にシクロプロピルカルボン酸メチル5.01g (50.1 mmol) を滴下した。反応混合物を7時間還流加熱した後、析出物を濾別し、濾液をエバポレーターにより濃縮した。得られた残渣に酢酸エチル50 ml と水50 ml を加え、分液した。酢酸エチル層を水洗後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、エバポレーターにより溶媒を留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒: ヘキサン/酢酸エチル=容量比1/1) により精製し、目的の2-アミノ-4-シクロプロピル-6-[2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ]-1, 3, 5-トリアジン (化合物A-4) 4.18g (収率80%) を得た。得られたトリ

アジン化合物のNMR、IRデータを前記表8に示した。

(参考例2) 化合物A-5 (トリアジン誘導体(I)) の製造:

特開昭63-264465号公報記載の方法を用いて合成した2-(3'-フルオロフェノキシ) イソプロピルビグアニド塩酸塩 (アルキルビグアニドの塩5.00g (19.9 mmol)) に、塩基のナトリウムメトキシド28重量%メタノール溶液11.5g (59.7 mmol) を室温で攪拌しながら加えた。さらに、ここにトリメチル酢酸メチル6.93g (59.7 mmol) を滴下した。反応液を7時間還流加熱した後、析出物を濾別し、濾液をエバポレーターにより濃縮した。得られた残渣に酢酸エチル50mlと水50mlを加え、分液した。酢酸エチル層を水洗後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、エバポレーターにより溶媒を留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒: ヘキサン/酢酸エチル=容量比1/1) により精製し、目的の2-アミノ-4-tert-ブチル-6-[2-(3'-フルオロフェノキシ) 1-メチル-エチルアミノ]-1,3,5-トリアジン (化合物A-5) 4.77g (収率85%) を得た。得られたトリアジン化合物のNMR、IRデータを前記表8に示した。

参考例1および2に準じて、化合物A-1~A-3、A-6~A-9を製造した。

(製剤例)

以下、本発明の除草剤組成物の製剤例を示す。

尚、製剤例1~16中、化合物A-1~A-9は、前記表1~表3に示したトリアジン誘導体であり、化合物B-(b1)-1~B-(b1)-7、B-(b2)-1~B-(b2)-7、B-(b3)-1~B-(b3)-3は、それぞれ表10、表11および表12に示す化合物である。

表 10

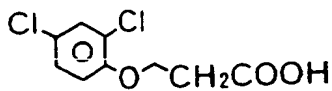
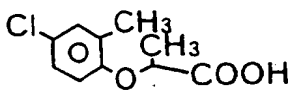
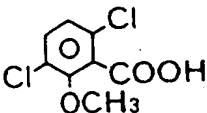
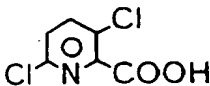
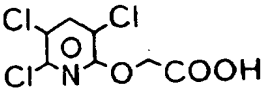
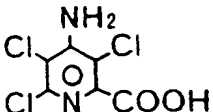
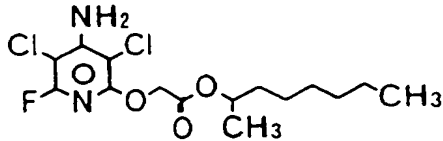
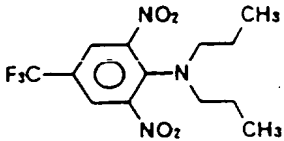
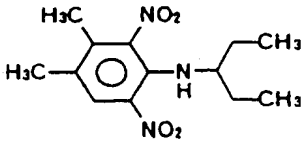
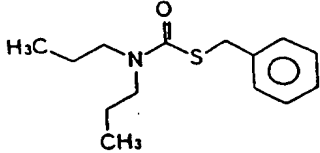
化合物 No.	構造式	化合物名	一般名
B-(b1)-1		2,4-ジクロロフェノキシ酢酸	2,4-D
B-(b1)-2		2-(4-クロロ-2-メチルフェノキシ)- プロパノ酸	メコップ (MCPP)
B-(b1)-3		3,6-ジクロロ-2-メトキシ- 安息香酸	ダイコンパ
B-(b1)-4		3,6-ジクロロピリジン酸	クロピラリト
B-(b1)-5		[(3,5,6-トリクロロ-2- ピリジル)オキシ]酢酸	トリクロピル
B-(b1)-6		4-アミノ-3,5,6-トリクロロ ピリジン酸	ピクロラム
B-(b1)-7		1'-メチルヘプチル [(4-アミノ- 3,5-ジクロロ-6-フルオロ-2- ピリジル)オキシ]アセテート	フルキシピル

表 1 1

化合物 No.	構造式	化合物名	一般名
B-(b2)-1		3-(3-クロロ-4-トリル)-1,1-ジメチルウレア	クロトルロン
B-(b2)-2		3-(4-イソプロピルフェニル)-1,1-ジメチルウレア	イソプロチロン
B-(b2)-3		1-(1,3-ベンゾチアゾール-2-イル)-1,3-ジメチルウレア	メタベンズチアズロン
B-(b2)-4		メチル-2-[3-(4-メトキシ-6-メチル-1,3,5-トリアジン-2-イル)ウレイト]スルフォニルヘキサエート	メトスルフロメチル
B-(b2)-5		2-(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イルカルバモイルスルファモイル)-N,N-ジメチルニコチンアミド	ニコスルフロ
B-(b2)-6		1-(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イル)-3-メチル(メチル)スルファモイルウレア	アミトスルフロ
B-(b2)-7		2',6'-ジクロロ-5,7-ジメトキシ-3'-メチル[1,2,4]トリアジン-[1,5-α]ヒリミジン-2-スルフォンアミド	メトスラム

表 1 2

化合物 No.	構造式	化合物名	一般名
B-(b3)-1		α, α, α -トリフルオロ-2,6-ジニトロ -N,N-ジエチル-p-トルイジン	トリフルラリン
B-(b3)-2		N-(1-エチルピロリジン-2,6-ジニトロ-3,4-キシリジン	ハントディ メタリン
B-(b3)-3		S-ベンジル-N,N-ジエチル チオカーバメート	フロスルフォ カルブ

なお、製剤例中、部は重量部を表す。

製剤例 1：水和剤

化合物 A-2	5 部
化合物 B-(b1)-7	5 部
ケイソウ土	72 部
ホワイトカーボン	15 部
アルキルベンゼンスルホン酸ナトリウム	2 部
リグニンスルホン酸ナトリウム	1 部

上記成分を均一に混合粉碎することにより、水和剤を調製した。

製剤例 2：フロアブル剤

化合物 A-2	5 部
化合物 B-(b1)-7	5 部
メチルセルロース	1 部
コロイド状シリカ	3 部
リグニンスルホン酸ナトリウム	2 部
ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル	5 部
水	79 部

上記成分を均一に混合分散させ、得られたスラリー状混合物を湿式粉碎することにより、フロアブル剤を調製した。

製剤例 3：乳剤

化合物 A-2	5 部
化合物 B-(b1)-7	5 部
キシレン	50 部
ジメチルホルムアミド	20 部
ソルボール 2806 B (東邦化学工業社製)	20 部

上記成分を均一に溶解混合することにより、乳剤を調製した。

製剤例 4：水和剤

担体としてタルク（商品名：ジークライト、ジークライト工業製）97部、界面活性剤としてアルキルアリールスルホン酸塩（商品名：ネオベレックス、花王

アトラス（株）製） 1.5部、およびノニオン型とアニオン型の界面活性剤（商品名：ソルボール 800A、東邦化学工業（株）製） 1.5部を均一に粉碎混合して、水和剤用担体を得た。

この水和剤用担体 90部と上記表 1～3 に示したトリアジン化合物（化合物 A-1～A-9） 10部を、均一に粉碎混合して、水和剤（以下、水和剤 A-1～A-9 という）を得た。また、上記水和剤用担体 90部と上記表 10 に示した除草剤化合物（化合物 B-(b1)-1～B-(b1)-7） 10部を、均一に粉碎混合して、水和剤（以下、水和剤 B-(b1)-1～B-(b1)-7 という）を得た。

上記で得られた水和剤 A-1～A-9（以下、水和剤 A と総称する）と水和剤 B-(b1)-1～B-(b1)-7（以下、水和剤 B-(b1) と総称する）とを、各々表 13～表 17 に示す薬量に対応する重量比で混合し、化合物 A-1～A-9 および化合物 B-(b1)-1～B-(b1)-7 を種々の組み合わせで含有する、本発明の除草剤組成物としての水和剤を得た。

製剤例 5：水和剤

化合物 A-2	5 部
化合物 B-(b2)-2	15 部
ケイソウ土	62 部
ホワイトカーボン	15 部
アルキルベンゼンスルホン酸ナトリウム	2 部
リグニンスルホン酸ナトリウム	1 部

上記成分を均一に混合粉碎することにより、水和剤を調製した。

製剤例 6：乳剤

化合物 A-2	10 部
化合物 B-(b2)-2	30 部
キシレン	20 部
ジメチルホルムアミド	20 部
ソルボール 2806B（東邦化学工業社製）	20 部

上記成分を均一に溶解混合することにより、乳剤を調製した。

製剤例 7：フロアブル剤

化合物 A-2	10 部
化合物 B-(b2)-2	15 部
メチルセルロース	0.5 部
コロイド状シリカ	1.5 部
リグニンスルホン酸ナトリウム	1 部
ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル	2 部
水	70 部

上記成分を均一に混合分散させ、得られたスラリー状混合物を湿式粉碎することにより、フロアブル剤を調製した。

製剤例 8：水和剤

担体としてクレー（商品名：ジークライト、ジークライト工業製）97 部、界面活性剤としてアルキルアールスルホン酸塩（商品名：ネオベレックス、花王アトラス（株）製）1.5 部、およびノニオン型とアニオン型の界面活性剤混合物（商品名：ソルボール 800A、東邦化学工業（株）製）1.5 部を均一に粉碎混合して、水和剤用担体を得た。

この水和剤用担体 90 部と上記表 1～3 に示したトリアジン化合物（化合物 A-1～A-9）10 部を、均一に粉碎混合して、水和剤（以下、水和剤 A-1～A-9 という）を得た。また、上記水和剤用担体 90 部と上記表 11 に示した除草剤化合物（化合物 B-(b2)-1～B-(b2)-7）10 部を、均一に粉碎混合して、水和剤（以下、水和剤 B-(b2)-1～B-(b2)-7 という）を得た。

上記で得られた水和剤 A-1～A-9（以下、水和剤 A と総称する）と水和剤 B-(b2)-1～B-(b2)-7（以下、水和剤 B-(b2) と総称する）とを、各々表 19～表 22 に示す薬量に対応する重量比で混合し、化合物 A-1～A-9 および化合物 B-(b2)-1～B-(b2)-7 を種々の組み合わせで含有する、本発明の除草剤組成物としての水和剤を得た。

製剤例 9：水和剤

化合物 A-2	5 部
---------	-----

化合物B-(b3)-2	15部
ケイソウ土	62部
ホワイトカーボン	15部
アルキルベンゼンスルホン酸ナトリウム	2部
リグニンスルホン酸ナトリウム	1部

上記成分を均一に混合粉碎することにより、水和剤を調製した。

製剤例10：乳剤

化合物A-2	10部
化合物B-(b3)-2	30部
キシレン	20部
ジメチルホルムアミド	20部
ソルボール2806B（東邦化学工業社製）	20部

上記成分を均一に溶解混合することにより、乳剤を調製した。

製剤例11：フロアブル剤

化合物A-2	10部
化合物B-(b3)-2	15部
メチルセルロース	0.5部
コロイド状シリカ	1.5部
リグニンスルホン酸ナトリウム	1部
ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル	2部
水	70部

上記成分を均一に混合分散させ、得られたスラリー状混合物を湿式粉碎することにより、フロアブル剤を調製した。

製剤例12：水和剤

担体としてクレー（商品名：ジークライト、ジークライト工業製）97部、界面活性剤としてアルキルアリールスルホン酸塩（商品名：ネオベレックス、花王アトラス（株）製）1.5部、およびノニオン型とアニオン型の界面活性剤混合物（商品名：ソルボール800A、東邦化学工業（株）製）1.5部を均一に粉碎混合して、水和剤用担体を得た。

この水和剤用担体 90 部と上記表 1～3 に示したトリアジン化合物（化合物 A-1～A-9）10 部を、均一に粉碎混合して、水和剤（以下、水和剤 A-1～A-9 という）を得た。また、上記水和剤用担体 90 部と上記表 12 に示した除草剤化合物（化合物 B-（b3）-1～B-（b3）-3）10 部を、均一に粉碎混合して、水和剤（以下、水和剤 B-（b3）-1～B-（b3）-3 という）を得た。

上記で得られた水和剤 A-1～A-9（以下、水和剤 A と総称する）と水和剤 B-（b3）-1～B-（b3）-3（以下、水和剤 B-（b3）と総称する）とを、各々表 24～25 に示す薬量に対応する重量比で混合し、化合物 A-1～A-9 および化合物 B-（b3）-1～B-（b3）-3 を種々の組み合わせで含有する、本発明の除草剤組成物としての水和剤を得た。

（除草試験例）

試験例 1：

（1）畑地土壌を充填した 1/2000 アールワグネルポットに畑地土壌を入れて、作物としてオオムギ、コムギおよびエンバク、雑草としてヤエムグラ、オオイヌノフグリおよびスミレの種子を播種し、覆土後、温室内で育成した。

上記製剤例 4 および 8 で製造した本発明の除草剤組成物としての水和剤を水に懸濁し、下記表 13～17、19～22 に示す各濃度の除草剤懸濁液を調製し、これを前記雑草の 4～5 葉期に、各々 5.00 リットル/ヘクタール相当の液量でポット全面に均一にスプレー散布した。

その後、温室内で育成し、処理後 30 日目に作物への薬害および除草効果を下記の基準により判定した。結果を下記の表 13～17、19～22 に示す。

（2）畑地土壌を充填した 1/2000 アールワグネルポットに畑地土壌を入れて、作物としてオオムギ、コムギおよびエンバク、雑草としてヤエムグラ、オオイヌノフグリおよびノスズメノテッポウの種子を播種し、覆土後、温室内で育成した。

上記製剤例 12 で製造した本発明の除草剤組成物としての水和剤を水に懸濁し、下記表 24、25 に示す各濃度の除草剤懸濁液を調製し、これを播種から 3 日後

に、各々500リットル／ヘクタール相当の液量でポット全面に均一にスプレー散布した。

その後、温室内で育成し、処理後30日目に作物への薬害および除草効果を下記の基準により判定した。結果を下記の表24、25に示す。

作物薬害

0	認められない
1	ほとんど認められない
2	若干認められる
3	認められる
4	顕著に認められる
5	ほとんど枯死

除草効果	殺草率 (%)
0	5%未満
1	5%以上20%未満
2	20%以上40%未満
3	40%以上70%未満
4	70%以上90%未満
5	90%以上

殺草率は、雑草の地上部の新鮮量を測定し、下記の式により算出した。

$$\text{殺草率 (\%)} = (1 - \text{処理区の新鮮量} / \text{無処理区の新鮮量}) \times 100$$

比較のために、本発明の除草剤組成物としての水和剤の代わりに、上記製剤例4、8、12で調製した水和剤Aおよび水和剤B-(b1)、B-(b2)、B-(b3)を各々単独で用いた以外は、上記と同様の評価方法により、薬害

および除草効果を調べた。結果を下記の表 18、23、26 に示す。

表 1 3

トリアジン誘導体		化合物B-(b1)		除 草 効 果			薬 害		
有効成分	薬 量 (g/ha)	有効成分	薬 量 (g/ha)	ヤエム グラ	オオイヌ ノフグリ	スミレ	オオムギ	コムギ	エンバク
A-1	100 50	B- (b1)-1	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-2	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-3	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-4	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-5	100 50	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-6	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-7	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
A-2	100 50	B- (b1)-1	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-2	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-3	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-4	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-5	100 50	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-6	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-7	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0

表 1 4

トリアジン誘導体		化合物B-(b1)		除 草 効 果			薬 害		
有効成分	薬 量 (g/ha)	有効成分	薬 量 (g/ha)	ヤエム グラ	オオイヌ ノフグリ	スミレ	オオムギ	コムギ	エンバク
A-3	100	B- (b1)-1	50	5	5	5	0	0	0
	50		25	5	5	5	0	0	0
	100	B- (b1)-2	200	5	5	5	0	0	0
	50		100	5	5	5	0	0	0
	100	B- (b1)-3	50	5	5	5	0	0	0
	50		25	5	5	5	0	0	0
	100	B- (b1)-4	200	5	5	5	0	0	0
	50		100	5	5	5	0	0	0
A-4	100	B- (b1)-5	100	5	5	5	0	0	0
	50		50	5	5	5	0	0	0
	100	B- (b1)-6	200	5	5	5	0	0	0
	50		100	5	5	5	0	0	0
	100	B- (b1)-7	50	5	5	5	0	0	0
	50		25	5	5	5	0	0	0
	100	B- (b1)-1	50	5	5	5	0	0	0
A-4	50		25	5	5	5	0	0	0
	100	B- (b1)-2	200	5	5	5	0	0	0
	50		100	5	5	5	0	0	0
	100	B- (b1)-3	50	5	5	5	0	0	0
	50		25	5	5	5	0	0	0
	100	B- (b1)-4	200	5	5	5	0	0	0
	50		100	5	5	5	0	0	0
A-4	100	B- (b1)-5	100	5	5	5	0	0	0
	50		50	5	5	5	0	0	0
	100	B- (b1)-6	200	5	5	5	0	0	0
	50		100	5	5	5	0	0	0
	100	B- (b1)-7	50	5	5	5	0	0	0
	50		25	5	5	5	0	0	0

表 1 5

トリアジン誘導体		化合物B-(b1)		除 草 効 果			薬 害		
有効成分	薬 量 (g/ha)	有効成分	薬 量 (g/ha)	ヤエム グラ	オオイヌ ノフグリ	スミレ	オオムギ	コムギ	エンバク
A-5	100 50	B- (b1)-1	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-2	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-3	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-4	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-5	100 50	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-6	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-7	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
A-6	100 50	B- (b1)-1	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-2	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-3	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-4	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-5	100 50	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-6	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-7	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0

表 16

トリアジン誘導体		化合物 B-(b1)		除 草 効 果			薬 害		
有効成分	薬 量 (g/ha)	有効成分	薬 量 (g/ha)	ヤエム グラ	オオイヌ ノフグリ	スミレ	オオムギ	コムギ	エンバク
A-7	100 50	B- (b1)-1	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-2	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-3	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-4	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-5	100 50	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-6	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-7	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
A-8	100 50	B- (b1)-1	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-2	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-3	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-4	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-5	100 50	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-6	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-7	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0

表 17

トリアジン誘導体		化合物B-(b1)		除 草 効 果			薬 害		
有効成分	薬 量 (g/ha)	有効成分	薬 量 (g/ha)	ヤエム グラ	オオイヌ ノフグリ	スミレ	オオムギ	コムギ	エンバク
A-9	100 50	B- (b1)-1	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-2	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-3	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-4	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-5	100 50	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-6	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b1)-7	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0

表 1 8

有効成分		薬 量 (g/ha)	除 草 効 果			薬 害		
			ヤエム グラ	オオイヌ ノフグリ	スミレ	オオムギ	コムギ	エンバク
トリ ア ジ ン 誘 導 体	A-1	100 50	2 1	5 3	5 4	0 0	0 0	0 0
	A-2	100 50	3 2	5 4	5 4	0 0	0 0	0 0
	A-3	100 50	3 1	5 3	4 3	0 0	0 0	0 0
	A-4	100 50	3 1	4 2	4 3	0 0	0 0	0 0
	A-5	100 50	2 2	5 3	5 4	0 0	0 0	0 0
	A-6	100 50	3 2	5 4	5 4	0 0	0 0	0 0
	A-7	100 50	3 1	5 3	4 4	0 0	0 0	0 0
	A-8	100 50	2 1	4 3	4 2	0 0	0 0	0 0
	A-9	100 50	2 1	4 4	4 2	0 0	0 0	0 0
化 合 物 B (b1)	B-(b1)-1	50 25	3 2	3 2	2 1	0 0	0 0	0 0
	B-(b1)-2	200 100	3 1	2 2	3 1	0 0	0 0	0 0
	B-(b1)-3	50 25	3 2	3 1	3 2	0 0	0 0	0 0
	B-(b1)-4	200 100	3 2	3 1	2 1	0 0	0 0	0 0
	B-(b1)-5	100 50	2 1	3 2	2 1	0 0	0 0	0 0
	B-(b1)-6	200 100	3 1	2 1	2 1	0 0	0 0	0 0
	B-(b1)-7	50 25	3 1	2 1	2 1	0 0	0 0	0 0

表 19

トリアジン誘導体		化合物 B-(b2)		除草効果			薬害		
有効成分	薬量 (g/ha)	有効成分	薬量 (g/ha)	ヤエムグラ	オオイヌノフグリ	スミレ	オオムギ	コムギ	エンバク
A-1	100 50	B-(b2)-1	2000 1500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B-(b2)-2	1500 1000	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B-(b2)-3	2000 1500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B-(b2)-4	10 5	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B-(b2)-5	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B-(b2)-6	20 10	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B-(b2)-7	10 5	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
A-2	100 50	B-(b2)-1	2000 1500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B-(b2)-2	1500 1000	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B-(b2)-3	2000 1500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B-(b2)-4	10 5	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B-(b2)-5	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B-(b2)-6	20 10	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B-(b2)-7	10 5	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0

表 20

トリアジン誘導体		化合物 B-(b2)		除 草 効 果			薬 害		
有効成分	薬 量 (g/ha)	有効成分	薬 量 (g/ha)	ヤエム グラ	オオイヌ ノフグリ	スミレ	オオムギ	コムギ	エンバク
A-3	100 50	B- (b2)-1	2000 1500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-2	1500 1000	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-3	2000 1500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-4	10 5	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-5	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-6	20 10	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-7	10 5	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
A-4	100 50	B- (b2)-1	2000 1500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-2	1500 1000	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-3	2000 1500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-4	10 5	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-5	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-6	20 10	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-7	10 5	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0

表 2 1

トリアジン誘導体		化合物 B-(b2)		除 草 効 果			薬 害		
有効成分	薬量 (g/ha)	有効成分	薬量 (g/ha)	ヤエム グラ	オオイヌ ノフグリ	スミレ	オオムギ	コムギ	エンバク
A-5	100 50	B- (b2)-1	2000 1500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-2	1500 1000	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-3	2000 1500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-4	10 5	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-5	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-6	20 10	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-7	10 5	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
A-6	100 50	B- (b2)-1	2000 1500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-2	1500 1000	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-3	2000 1500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-4	10 5	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-5	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-6	20 10	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-7	10 5	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0

表 2 2

トリアジン誘導体		化合物 B-(b2)		除 草 効 果			薬 害		
有効成分	薬 量 (g/ha)	有効成分	薬 量 (g/ha)	ヤエム グラ	オオイヌ ノフグリ	スミレ	オオムギ	コムギ	エンバク
A-7	100 50	B- (b2)-1	2000 1500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-2	1500 1000	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-3	2000 1500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-4	10 5	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-5	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-6	20 10	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-7	10 5	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
A-8	100 50	B- (b2)-1	2000 1500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-2	1500 1000	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-3	2000 1500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-4	10 5	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-5	50 25	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-6	20 10	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b2)-7	10 5	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0

表 2 3

有効成分		薬 量 (g/ha)	除 草 効 果			薬 害		
			ヤエム グラ	オオイヌ ノフグリ	スミレ	オオムギ	コムギ	エンバク
トリ ア ジ ン 誘 導 体	A-1	100 50	2 1	5 3	5 4	0 0	0 0	0 0
	A-2	100 50	3 2	5 4	5 4	0 0	0 0	0 0
	A-3	100 50	3 1	5 3	4 3	0 0	0 0	0 0
	A-4	100 50	3 1	4 2	4 3	0 0	0 0	0 0
	A-5	100 50	2 2	5 3	5 4	0 0	0 0	0 0
	A-6	100 50	3 2	5 4	5 4	0 0	0 0	0 0
	A-7	100 50	3 1	5 3	4 4	0 0	0 0	0 0
	A-8	100 50	2 1	4 3	4 2	0 0	0 0	0 0
	A-9	100 50	2 1	4 4	4 2	0 0	0 0	0 0
化 合 物 B (b2)	B-(b2)-1	2000 1500	2 1	2 0	1 0	0 0	0 0	0 0
	B-(b2)-2	1500 1000	1 0	2 1	1 0	0 0	0 0	0 0
	B-(b2)-3	2000 1500	1 0	1 0	1 0	0 0	0 0	0 0
	B-(b2)-4	10 5	3 3	3 3	3 2	0 0	0 0	0 0
	B-(b2)-5	50 25	2 1	2 0	2 1	0 0	0 0	0 0
	B-(b2)-6	20 10	3 1	2 1	2 1	0 0	0 0	0 0
	B-(b2)-7	10 5	3 1	2 1	2 1	0 0	0 0	0 0

表 2 4

トリアジン誘導体		化合物 B-(b3)		除 草 効 果			薬 害		
有効成分	薬 量 (g/ha)	有効成分	薬 量 (g/ha)	ヤエム グラ	オオイヌ ノフグリ	ノスズメノ テッポウ	オオムギ	コムギ	エンバク
A-1	100 50	B- (b3)-1	1000 500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b3)-2	1000 500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b3)-3	2000 1000	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
A-2	100 50	B- (b3)-1	1000 500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b3)-2	1000 500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b3)-3	2000 1000	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
A-3	100 50	B- (b3)-1	1000 500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b3)-2	1000 500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b3)-3	2000 1000	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
A-4	100 50	B- (b3)-1	1000 500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b3)-2	1000 500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b3)-3	2000 1000	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
A-5	100 50	B- (b3)-1	1000 500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b3)-2	1000 500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b3)-3	2000 1000	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0

表 2 5

トリアジン誘導体		化合物 B-(b3)		除 草 効 果			薬 害		
有効成分	薬 量 (g/ha)	有効成分	薬 量 (g/ha)	ヤエム グラ	オオイヌ ノフグリ	ノスズメノ テッポウ	オオムギ	コムギ	エンバク
A-6	100 50	B- (b3)-1	1000 500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b3)-2	1000 500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b3)-3	2000 1000	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
A-7	100 50	B- (b3)-1	1000 500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b3)-2	1000 500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b3)-3	2000 1000	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
A-8	100 50	B- (b3)-1	1000 500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b3)-2	1000 500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b3)-3	2000 1000	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
A-9	100 50	B- (b3)-1	1000 500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b3)-2	1000 500	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
	100 50	B- (b3)-3	2000 1000	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0

表 2 6

有効成分		薬 量 (g/ha)	除 草 効 果			薬 害		
			ヤエム グラ	オオイヌ ノフグリ	ノスズメノ テッポウ	オオムギ	コムギ	エンバク
トリ ア ジ ン 誘 導 体	A-1	100 50	2 1	5 3	2 0	0 0	0 0	0 0
	A-2	100 50	3 2	5 4	2 2	0 0	0 0	0 0
	A-3	100 50	3 1	5 3	1 1	0 0	0 0	0 0
	A-4	100 50	3 1	4 2	1 0	0 0	0 0	0 0
	A-5	100 50	2 2	5 3	2 1	0 0	0 0	0 0
	A-6	100 50	3 2	5 4	2 1	0 0	0 0	0 0
	A-7	100 50	3 1	5 3	1 1	0 0	0 0	0 0
	A-8	100 50	2 1	4 3	1 0	0 0	0 0	0 0
	A-9	100 50	2 1	4 4	1 1	0 0	0 0	0 0
化 合 物 — (b3)	B-(b3)-1	1000 500	3 2	3 2	4 4	0 0	0 0	0 0
	B-(b3)-2	1000 500	3 2	3 3	5 4	0 0	0 0	0 0
	B-(b3)-3	2000 1000	3 2	4 2	4 3	0 0	0 0	0 0

表 13～26 の結果から、水和剤 A および水和剤 B－(b1)、B－(b2)、B－(b3) のそれぞれを混合してなる本発明の除草剤組成物は、ヤエムグラ、オオイヌノフグリ、スミレあるいはノスズメノテッポウのいずれの雑草に対しても優れた除草効果を示し、かつオオムギ、コムギ、エンバクに対して薬害を与えないのに対し、水和剤 A、水和剤 B－(b1)、B－(b2)、B－(b3) を各々単独で施用した場合には雑草の種類によって除草効果に差があり、十分な除草効果が得られない場合があった。

試験例 2：

本発明の除草剤組成物の相乗効果を評価するために、上記試験例 1 で測定した水和剤 A、水和剤 B－(b1)、B－(b2)、B－(b3) を各々単独で処理した場合のヤエムグラに対する殺草率から、下記式に基づいて予測値 (QE) を計算し、上記試験例 1 で測定した本発明の除草剤組成物としての水和剤を施用した場合のヤエムグラに対する殺草率 (実測値) と比較した。実測値が予測値を超えた場合に、相乗作用があると判断される。

$$QE = Qa + Qb - (Qa \cdot Qb / 100)$$

QE：予測値

Qa：化合物 A－1～A－9 のみを有効成分として a g／ヘクタール相当の量で施用したときの殺草率の実測値

Qb：化合物 B－(b1)、B－(b2)、B－(b3) のみを有効成分として b g／ヘクタール相当の量で施用したときの殺草率の実測値

結果を下記の表 27～33 に示す。

表 2 7

トリアジン誘導体		化合物 B-(b1)		除草効果 (ヤエムグラ)	
有効成分	薬量 (g/ha)	有効成分	薬量 (g/ha)	実測値 殺草率 (%)	予測値 Q 殺草率 (%)
A-1	50	B-(b1)-1	25	92	39
		B-(b1)-2	100	90	28
		B-(b1)-3	25	97	43
		B-(b1)-4	100	98	44
		B-(b1)-5	50	91	24
		B-(b1)-6	100	93	27
		B-(b1)-7	25	90	20
A-2	50	B-(b1)-1	25	98	54
		B-(b1)-2	100	95	45
		B-(b1)-3	25	96	56
		B-(b1)-4	100	97	57
		B-(b1)-5	50	91	42
		B-(b1)-6	100	90	44
		B-(b1)-7	25	91	39
A-3	5.0	B-(b1)-1	25	90	44
		B-(b1)-2	100	92	36
		B-(b1)-3	25	91	47
		B-(b1)-4	100	93	48
		B-(b1)-5	50	90	23
		B-(b1)-6	100	91	33
		B-(b1)-7	25	91	26

表 28

トリアジン誘導体		化合物 B-(b1)		除草効果 (ヤエムグラ)	
有効成分	薬量 (g/ha)	有効成分	薬量 (g/ha)	実測値 殺草率 (%)	予測値 Q 殺草率 (%)
A-4	50	B-(b1)-1	25	91	43
		B-(b1)-2	100	92	33
		B-(b1)-3	25	91	47
		B-(b1)-4	100	93	48
		B-(b1)-5	50	90	29
		B-(b1)-6	100	94	31
		B-(b1)-7	25	90	25
A-5	50	B-(b1)-1	25	97	54
		B-(b1)-2	100	95	46
		B-(b1)-3	25	97	57
		B-(b1)-4	100	99	58
		B-(b1)-5	50	91	43
		B-(b1)-6	100	92	45
		B-(b1)-7	25	93	40
A-6	50	B-(b1)-1	25	98	52
		B-(b1)-2	100	95	43
		B-(b1)-3	25	97	55
		B-(b1)-4	100	97	55
		B-(b1)-5	50	91	40
		B-(b1)-6	100	91	42
		B-(b1)-7	25	90	36

表 2 9

トリアジン誘導体		化合物 B-(b1)		除草効果 (ヤエムグラ)	
有効成分	薬量 (g/ha)	有効成分	薬量 (g/ha)	実測値 殺草率 (%)	予測値 Q 殺草率 (%)
A-7	50	B-(b1)-1	25	92	43
		B-(b1)-2	100	91	32
		B-(b1)-3	25	91	46
		B-(b1)-4	100	93	47
		B-(b1)-5	50	90	29
		B-(b1)-6	100	92	31
		B-(b1)-7	25	90	24
A-8	50	B-(b1)-1	25	94	44
		B-(b1)-2	100	93	36
		B-(b1)-3	25	95	47
		B-(b1)-4	100	95	48
		B-(b1)-5	50	90	30
		B-(b1)-6	100	92	33
		B-(b1)-7	25	90	26
A-9	50	B-(b1)-1	25	91	43
		B-(b1)-2	100	93	33
		B-(b1)-3	25	90	47
		B-(b1)-4	100	94	48
		B-(b1)-5	50	91	29
		B-(b1)-6	100	92	31
		B-(b1)-7	25	90	25

表 3 0

トリアジン誘導体		化合物 B-(b2)		除草効果 (ヤエムグラ)	
有効成分	薬量 (g/ha)	有効成分	薬量 (g/ha)	実測値 殺草率 (%)	予測値 Q 殺草率 (%)
A-1	50	B-(b2)-1	1500	92	35
		B-(b2)-2	1000	90	22
		B-(b2)-3	1500	91	22
		B-(b2)-4	5	99	63
		B-(b2)-5	25	91	34
		B-(b2)-6	10	93	35
		B-(b2)-7	5	90	34
A-2	50	B-(b2)-1	1500	98	50
		B-(b2)-2	1000	95	40
		B-(b2)-3	1500	96	40
		B-(b2)-4	5	98	72
		B-(b2)-5	25	91	50
		B-(b2)-6	10	90	50
		B-(b2)-7	5	91	49
A-3	50	B-(b2)-1	1500	90	34
		B-(b2)-2	1000	92	21
		B-(b2)-3	1500	90	21
		B-(b2)-4	5	99	72
		B-(b2)-5	25	90	34
		B-(b2)-6	10	92	34
		B-(b2)-7	5	91	33

表 3 1

トリアジン誘導体		化合物 B-(b2)		除草効果 (ヤエムグラ)	
有効成分	薬量 (g/ha)	有効成分	薬量 (g/ha)	実測値 殺草率 (%)	予測値 Q 殺草率 (%)
A-4	50	B-(b2)-1	1500	93	40
		B-(b2)-2	1000	92	23
		B-(b2)-3	1500	91	23
		B-(b2)-4	5	98	74
		B-(b2)-5	25	90	35
		B-(b2)-6	10	94	36
		B-(b2)-7	5	90	34
A-5	50	B-(b2)-1	1500	97	49
		B-(b2)-2	1000	95	39
		B-(b2)-3	1500	97	39
		B-(b2)-4	5	99	71
		B-(b2)-5	25	91	48
		B-(b2)-6	10	92	49
		B-(b2)-7	5	93	48
A-6	50	B-(b2)-1	1500	98	50
		B-(b2)-2	1000	95	40
		B-(b2)-3	1500	97	40
		B-(b2)-4	5	98	72
		B-(b2)-5	25	91	49
		B-(b2)-6	10	91	50
		B-(b2)-7	5	90	48

表 3 2

トリアジン誘導体		化合物 B-(b2)		除草効果 (ヤエムグラ)	
有効成分	薬量 (g/ha)	有効成分	薬量 (g/ha)	実測値 殺草率 (%)	予測値 Q 殺草率 (%)
A-7	50	B-(b2)-1	1500	92	35
		B-(b2)-2	1000	91	22
		B-(b2)-3	1500	90	22
		B-(b2)-4	5	97	63
		B-(b2)-5	25	90	34
		B-(b2)-6	10	92	35
		B-(b2)-7	5	91	34
A-8	50	B-(b2)-1	1500	94	36
		B-(b2)-2	1000	93	23
		B-(b2)-3	1500	95	23
		B-(b2)-4	5	96	54
		B-(b2)-5	25	90	35
		B-(b2)-6	10	92	36
		B-(b2)-7	5	90	34
A-9	50	B-(b2)-1	1500	91	35
		B-(b2)-2	1000	93	22
		B-(b2)-3	1500	90	22
		B-(b2)-4	5	98	63
		B-(b2)-5	25	91	34
		B-(b2)-6	10	92	35
		B-(b2)-7	5	90	34

表 3 3

トリアジン誘導体		化合物 B-(b3)		除草効果 (ヤエムグラ)	
有効成分	薬量 (g/ha)	有効成分	薬量 (g/ha)	実測値 殺草率 (%)	予測値 Q 殺草率 (%)
A-1	50	B-(b3)-1	500	92	47
		B-(b3)-2	500	90	49
		B-(b3)-3	1000	94	51
A-2	50	B-(b3)-1	500	94	58
		B-(b3)-2	500	95	60
		B-(b3)-3	1000	97	62
A-3	50	B-(b3)-1	500	92	48
		B-(b3)-2	500	91	50
		B-(b3)-3	1000	93	51
A-4	50	B-(b3)-1	500	91	47
		B-(b3)-2	500	91	49
		B-(b3)-3	1000	95	50
A-5	50	B-(b3)-1	500	96	60
		B-(b3)-2	500	97	62
		B-(b3)-3	1000	98	63
A-6	50	B-(b3)-1	500	95	59
		B-(b3)-2	500	97	60
		B-(b3)-3	1000	98	62
A-7	50	B-(b3)-1	500	93	48
		B-(b3)-2	500	93	50
		B-(b3)-3	1000	96	51
A-8	50	B-(b3)-1	500	95	47
		B-(b3)-2	500	94	49
		B-(b3)-3	1000	97	51
A-9	50	B-(b3)-1	500	94	48
		B-(b3)-2	500	96	50
		B-(b3)-3	1000	96	51

表 27～33の結果から、本発明の除草剤組成物の（A）成分（化合物A－1～A－9）と、（B）成分〔化合物B－（b1）、B－（b2）、B－（b3）〕との併用による除草効果の相乗性が、ヤエムグラの例をとると明らかである。すなわち、すべての本発明の除草剤組成物において、ヤエムグラに対する殺草率の実測値と予測値の差が大きく、高い相乗効果を示すことが明らかになった。

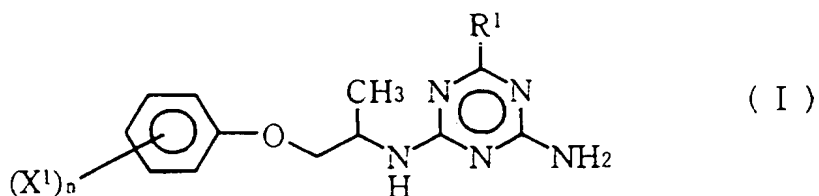
（以下余白）

産業上の利用可能性

本発明の除草剤組成物は、ムギなどの作物、あるいは芝生に対して薬害を及ぼすことなく、低薬量で広範な雑草、特に広葉雑草やイネ科雑草を効果的に防除することができ、農作物のさらなる生産性の向上および省力化などに寄与することができる。

請求の範囲

1. (A) 一般式 (I)



(式中、 X^1 は直鎖若しくは分岐 $C_1 \sim C_4$ アルキル基またはハロゲン原子であり、 n は0～4の整数であり、 n が2以上の整数である場合、複数の X^1 は互いに同一または異なっているもよい。

R^1 は直鎖若しくは分岐 $C_1 \sim C_{10}$ アルキル基であり、このアルキル基は、 $C_1 \sim C_4$ アルコキシ基、ヒドロキシル基及びハロゲン原子の中から選ばれた基1個または同一若しくは異なる基2～4個によって置換されているもよい。)

で表されるトリアジン誘導体またはその塩と、(B) (b1) フェノキシ系除草剤、ベンゾイック系除草剤およびピリジン系除草剤、(b2) ウレア系除草剤、スルホニルウレア系除草剤およびスルホンアミド系除草剤、並びに(b3) ジニトロアニリン系除草剤およびカーバメート系除草剤からなる群より選択される化合物の少なくとも1種とを、有効成分として含有する除草剤組成物。

2. 一般式 (I) における X^1 がメチル基またはフッ素原子である、請求項1に記載の除草剤組成物。

3. 一般式 (I) における n が1または2である、請求項2に記載の除草剤組成物。

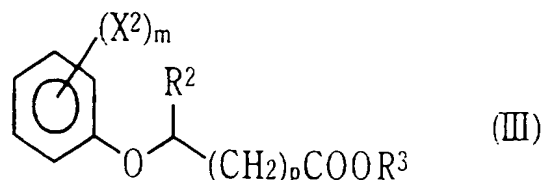
4. 一般式 (I) における X^1 の置換位置がフェノキシ基の3位または5位あるいはその両方である、請求項3に記載の除草剤組成物。

5. 一般式 (I) における R^1 が $C_1 \sim C_4$ アルコキシ基、ヒドロキシル基およびハロゲン原子によって置換されていない、直鎖または分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基である、請求項1に記載の除草剤組成物。

6. 一般式 (I) における R^1 が1または2個のメトキシ基、1個のブトキシ基または1個のヒドロキシル基によって置換された、直鎖または分岐 $C_1 \sim C_4$ アル

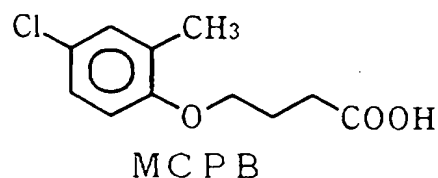
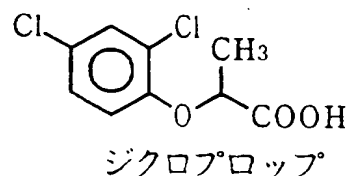
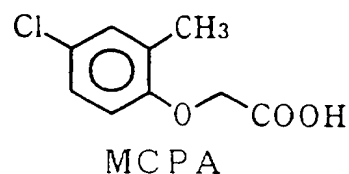
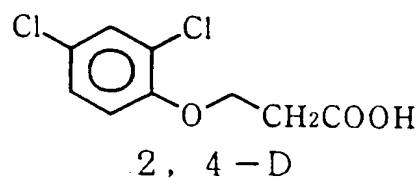
キル基である、請求項 1 に記載の除草剤組成物。

7. (B) 成分 (b 1) グループのフェノキシ系除草剤が、一般式 (III)



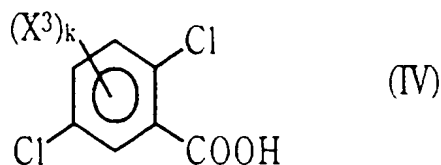
(式中、 X^2 はハロゲン原子またはハロゲン原子で置換されていてもよい直鎖若しくは分岐 $\text{C}_1 \sim \text{C}_4$ アルキル基を表し、 m は 0 ～ 5 の整数を表し、 m が 2 以上の整数を表す場合、複数の X^2 は互いに同一でも異なってもよい； R^2 は水素原子、または直鎖若しくは分岐 $\text{C}_1 \sim \text{C}_4$ アルキル基を表し； R^3 は水素原子、または直鎖若しくは分岐 $\text{C}_1 \sim \text{C}_4$ アルキル基を表し、 p は 0 ～ 4 の整数を表す) で表される化合物である、請求項 1 に記載の除草剤組成物。

8. フェノキシ系除草剤が、



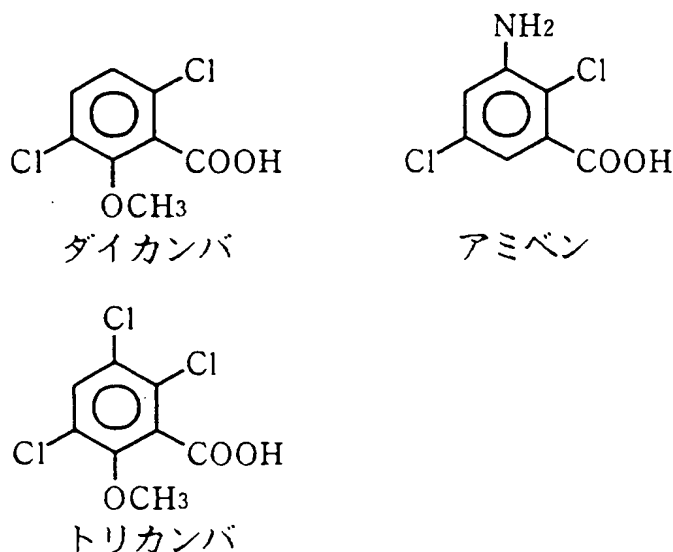
からなる群から選ばれる少なくとも 1 種の化合物である、請求項 7 に記載の除草剤組成物。

9. (B) 成分 (b 1) グループのベンゾイック系除草剤が、一般式 (IV)



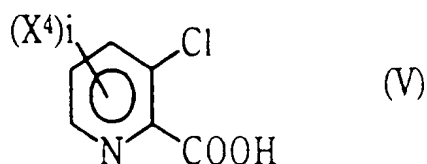
(式中、 X^3 はハロゲン原子、直鎖若しくは分岐 $C_1 \sim C_4$ アルコキシ基、アミノ基またはニトロ基を表し、 k は0～3の整数を表し、 k が2以上の整数を表す場合、複数の X^3 は互いに同一でも異なってもよい)で表される化合物である、請求項1に記載の除草剤組成物。

10. ベンゾイック系除草剤が、

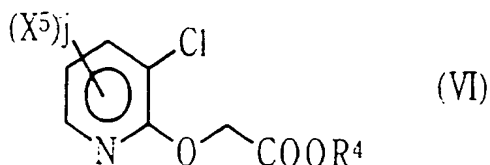


からなる群から選ばれる少なくとも1種の化合物である、請求項9に記載の除草剤組成物。

11. (B)成分(b1)グループのピリジン系除草剤が、一般式(V)

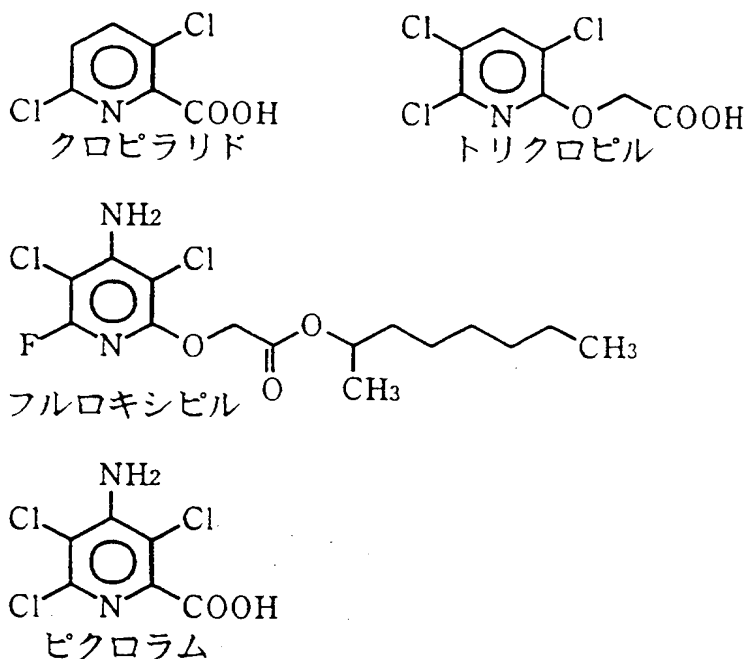


(式中、 X^4 はハロゲン原子またはアミノ基を表し、 i は0～3の整数を表し、 i が2以上の整数を表す場合、複数の X^4 は互いに同一でも異なってもよい)で表される化合物、または一般式(VI)



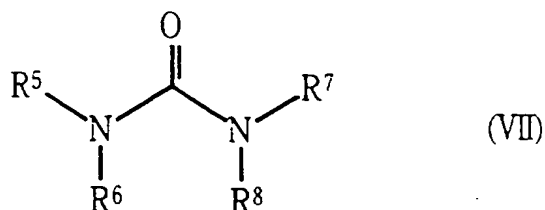
(式中、 X^5 はハロゲン原子またはアミノ基を表し、 j は0～3の整数を表し、 j が2以上の整数を表す場合、複数の X^5 は互いに同一でも異なってもよく； R^4 は水素原子または直鎖若しくは分岐 $C_1 \sim C_{10}$ アルキル基を表す)で表される化合物である、請求項1に記載の除草剤組成物。

12. ビリジン系除草剤が、



からなる群から選ばれる少なくとも1種の化合物であることを特徴とする、請求項11に記載の除草剤組成物。

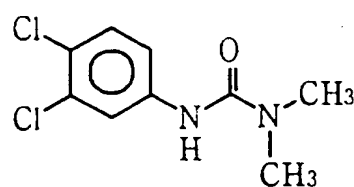
13. (B)成分(b1)グループのウレア系除草剤が、一般式(VII)



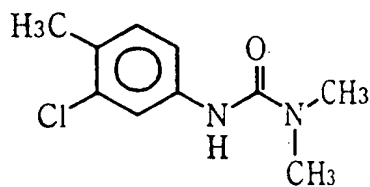
(式中、 R^5 は任意に置換されたフェニル基または芳香族複素環式基を表し、 R^6

は水素原子または直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基を表し、 R^7 は直鎖または分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基を表し、 R^8 は水素原子、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基または直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基を表す) で表される化合物である、請求項 1 に記載の除草剤組成物。

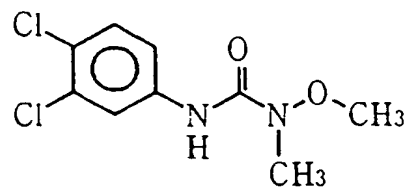
14. ウレア系除草剤が、



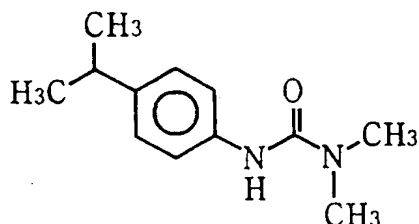
デュウロン



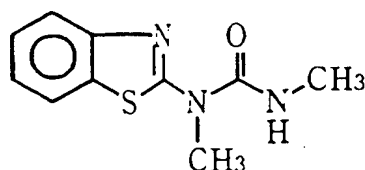
クロロトルロン



リニュロン



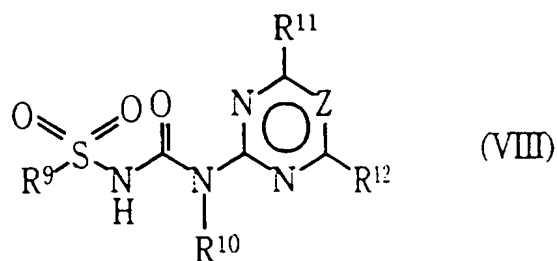
イソプロチュロン



メタベンズチアズロン

からなる群から選ばれる少なくとも 1 種の化合物であることを特徴とする、請求項 13 に記載の除草剤組成物。

15. (B) 成分 (b2) グループのスルホニルウレア系除草剤が、一般式 (VIII)

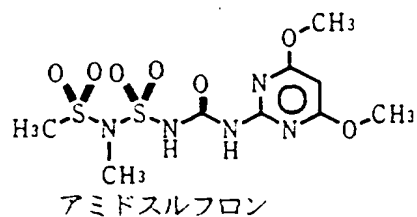
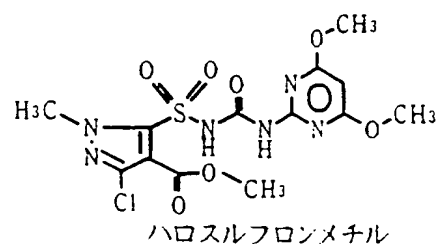
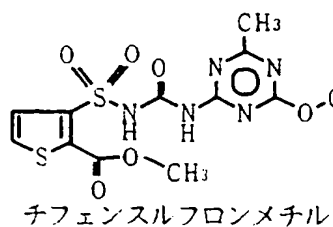
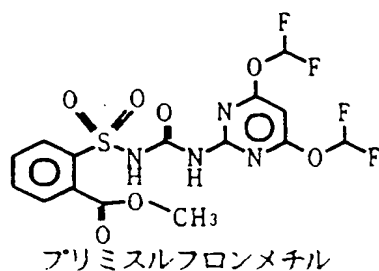
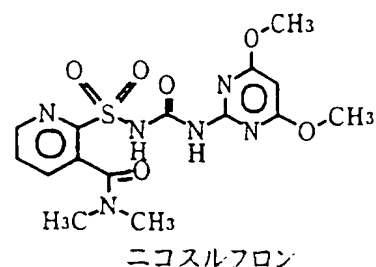
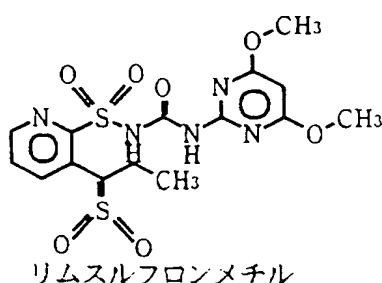
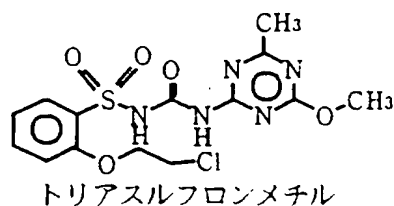
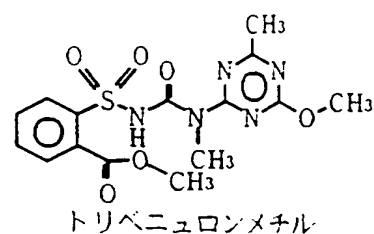
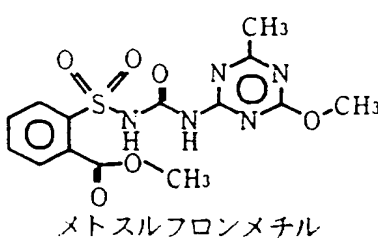
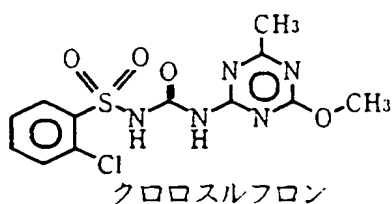


(VIII)

(式中、Z は窒素原子または炭素原子を表し、 R^9 は任意に置換されたフェニル基、芳香族複素環式基またはスルホンアミド基を表し、 R^{10} は水素原子または直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基を表し、 R^{11} は水素原子、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基または直鎖もしくは分岐

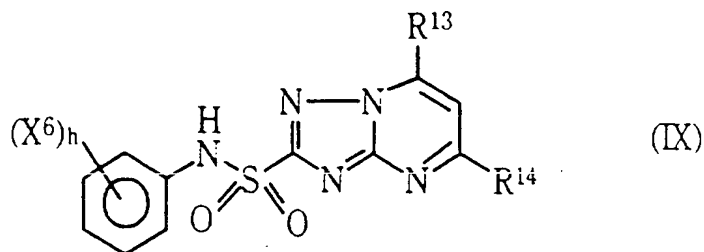
C₁～C₆ハロアルコキシ基を表し、R¹²は水素原子、直鎖もしくは分岐C₁～C₆アルキル基、直鎖もしくは分岐C₁～C₆アルコキシ基または直鎖もしくは分岐C₁～C₆ハロアルコキシ基を表す)で表される化合物である、請求項1に記載の除草剤組成物。

16. スルホニルウレア系除草剤が、



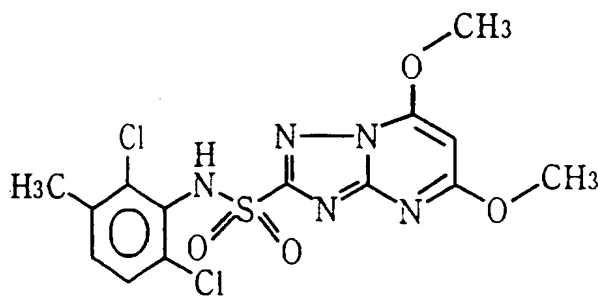
からなる群から選ばれる少なくとも1種の化合物である、請求項15に記載の除草剤組成物。

17. (B) 成分 (b2) グループのスルホンアミド系除草剤が、一般式 (IX)

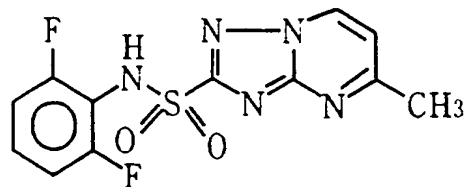


(式中、 X^6 は直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基またはハロゲン原子を表し、 h は0～4の整数を表し、 h が2以上の整数を表す場合、複数の X^6 は互いに同一でも異なってもよく； R^{13} は水素原子、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基または直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基を表し、 R^{14} は水素原子、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基または直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基を表す)で表される化合物である、請求項1に記載の除草剤組成物。

18. スルホンアミド系除草剤が、



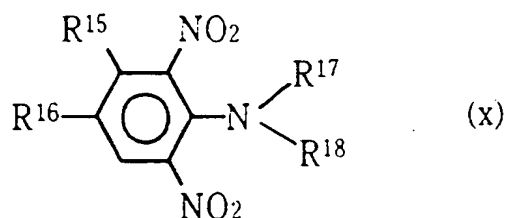
メトスラム



フルメトスラム

からなる群から選ばれる少なくとも1種の化合物である、請求項17に記載の除草剤組成物。

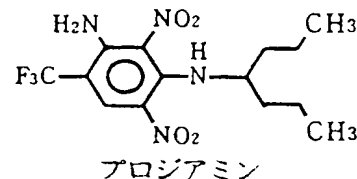
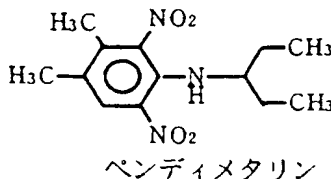
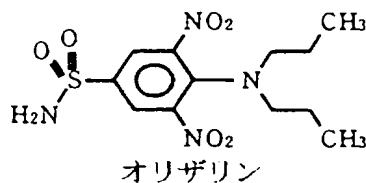
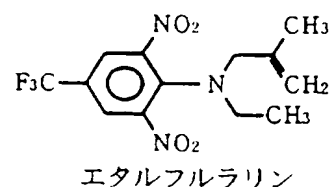
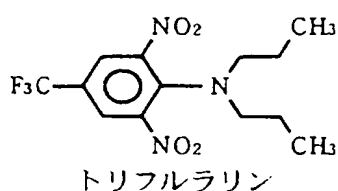
19. (B) 成分 (b3) グループのジニトロアニリン系除草剤が、一般式 (X)



(式中、 R^{15} は水素原子、アミノ基または直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基

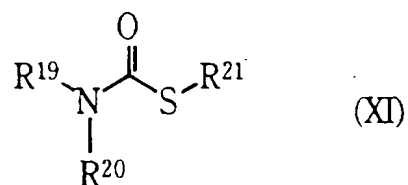
を表し、 R^{16} は直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基またはスルホンアミド基を表し、 R^{17} は水素原子、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルケニル基または直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基を表し、 R^{18} は水素原子、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルケニル基または直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基を表す)で表される化合物である、請求項1に記載の除草剤組成物。

20. ジニトロアニリン系除草剤が、



からなる群から選ばれる少なくとも1種の化合物である、請求項19に記載の除草剤組成物。

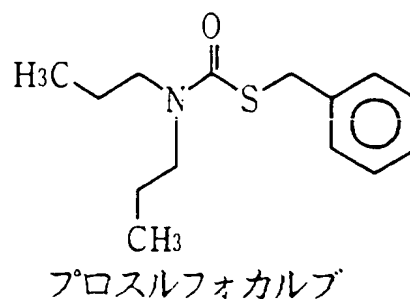
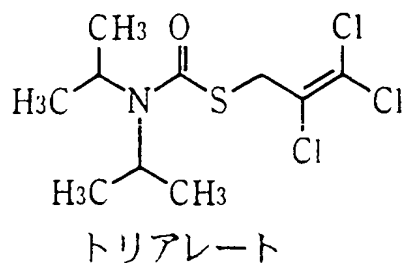
21. (B)成分(b3)グループのカーバメート系除草剤が、一般式(XI)



(式中、 R^{19} は水素原子または直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基を表し、 R^{20} は水素原子または直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基を表し、 R^{21} は任意に置換されたフェニル基、 $C_7 \sim C_{12}$ アラルキル基もしくは芳香族複素環式基、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基、直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基または直鎖もしくは分岐 $C_1 \sim C_6$ ハロア

ルケニル基を表す)で表される化合物である、請求項1に記載の除草剤組成物。

22. カーバメート系除草剤が、



からなる群から選ばれる少なくとも1種の化合物である、請求項21に記載の除草剤組成物。

23. (A)成分と(B)成分(b1)グループとを、重量比100:1~1:500の割合で含有する、請求項1に記載の除草剤組成物。

24. (A)成分と(B)成分(b2)グループのウレア系除草剤とを、重量比10:1~1:500の割合で含有する、請求項1に記載の除草剤組成物。

25. (A)成分と(B)成分(b2)グループのスルホニルウレア系除草剤とを、重量比100:1~1:10の割合で含有する、請求項1に記載の除草剤組成物。

26. (A)成分と(B)成分(b2)グループのスルホンアミド系除草剤とを、重量比10:1~1:100の割合で含有する、請求項1に記載の除草剤組成物。

27. (A)成分と(B)成分(b3)グループとを、重量比1:1~1:1000の割合で含有する、請求項1に記載の除草剤組成物。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP97/00926

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int. Cl.⁶ A01N43/68 // (A01N43/68, A01N37:02) (A01N43/68, A01N37:10) (A01N43/68, A01N43:40) (A01N43/68, A01N47:30) (A01N43/68, A01N41:06) (A01N43/68, A01N33:18) (A01N43/68, A01N47:10)
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. Cl.⁶ A01N43/64-43/70, 33/14-33/22, 37/10, 43/40, 41/06, 47/10, 47/28-47/32, C07D251/18

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
CAS ONLINE

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 4-235105, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), August 24, 1992 (24. 08. 92), Claim; par. Nos. (0001), (0017) to (0023), (0033); Tables 1 to 3 & EP, 464518, B1 & CA, 2045834, A & US, 5169425, A & DE, 69106236, A1	1-4, 7, 8, 14, 15 23-24
X	JP, 4-95003, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), March 27, 1992 (27. 03. 92), Claim; page 4, upper left column, line 14 to lower right column, line 13; Tables 1, 2 (Family: none)	1-4, 19, 20, 27
X	JP, 4-77403, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), March 11, 1992 (11. 03. 92), Claim; page 4, upper left column, line 14 to lower right column, line 15; Tables 1, 2 & EP, 467204, B1 & DE, 69106252, A1 & ES, 2069132, T3	1-4, 13, 14, 24
X	JP, 7-267805, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.),	1-4, 11,

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

June 13, 1997 (13. 06. 97)

Date of mailing of the international search report

July 1, 1997 (01. 07. 97)

Name and mailing address of the ISA/

Japanese Patent Office

Facsimile No.

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP97/00926

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
	October 17, 1995 (17. 10. 95), Claim; par. Nos. (0006), (0018) to (0029); Tables 1, 2 (Family: none)	12, 15, 19, 20, 23, 24, 25, 27
X	JP, 7-267804, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), October 17, 1995 (17. 10. 95), Claim; par. Nos. (0007), (0018) to (0028); Tables 1, 2 (Family: none)	1-4, 11, 12, 15, 19, 20, 23-25, 27
X	JP, 4-99703, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), March 31, 1992 (31. 03. 92), Claim; page 4, upper right column, line 14 to page 5, upper right column, line 11; Tables 1, 2 & EP, 471284, B1 & CA, 2048951, A & US, 5234893, A & DE, 69106812, A1 & ES, 2070379, T3	1-4, 15, 16, 24, 25
X	JP, 4-95004, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), March 27, 1992 (27. 03. 92), Claim; page 4, upper left column, line 14 to upper right column, line 9; Tables 1, 2 & EP, 471221, B1 & DE, 69109399, A1 & ES, 2074611, T3	1-4, 21, 22, 27
X	JP, 4-89409, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), March 23, 1992 (23. 03. 92), Claim; page 4, upper left column, line 14 to lower left column, line 10; Tables 1, 2 & EP, 469406, B1 & CA, 2048209, A & US, 5344810, A & DE, 69116460, A1 & ES, 2084735, T3	1-4, 9-12, 23
A	JP, 3-261703, A (Hokko Chemical Industry Co., Ltd.), November 21, 1991 (21. 11. 91), Claim; Tables 1 to 3 (Family: none)	1 - 27

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. A01N43/68/(A01N43/68, A01N37:02)(A01N43/68, A01N37:10)(A01N43/68, A01N43:40)(A01N43/68, A01N47:30)(A01N43/68, A01N41:06)(A01N43/68, A01N33:18)(A01N43/68, A01N47:10)

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. A01N43/64-43/70, 33/14-33/22, 37/10, 43/40, 41/06, 47/10, 47/28-47/32 C07D251/13

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CAS ON LINE

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J.P. 4-235105, A (出光興産株式会社) 24. 8月. 1992 (24. 08. 92) 特許請求の範囲, 【0001】 【0017】 から【0023】 【0033】段落、第1表から第3表 & E.P. 464518, B1 & CA. 2045834, A & U.S. 5169425, A & DE. 69106236, A1	1-4, 7, 8, 14, 15 23-24
X	J.P. 4-95003, A (出光興産株式会社) 27. 3月. 1992 (27. 03. 92) 特許請求の範囲 第4頁左上欄第14行-右下欄第13行 第1表、 第2表 ファミリーなし	1-4, 19, 20, 27

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

13. 06. 97

国際調査報告の発送日

01.07.97

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

印

4H 7011

平山 美千恵

電話番号 03-3581-1101 内線 3444

C (続き) 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P. 4-77403, A (出光興産株式会社) 11. 3月. 1992 (11. 03. 92) 特許請求の範囲 第4頁左上欄第14行-右下欄第15行 第1表、第2表 & EP. 467204, B1 & DE. 69106252, A1 & ES. 2069132, T3	1-4、13、 14、24
X	J P. 7-267805, A (出光興産株式会社) 17. 10月. 1995 (17. 10. 95) 特許請求の範囲 【0006】【0018】から【0029】段落 第1表、第2表 ファミリーなし	1-4、11、 12、15、19、 20、23、 24、25、27
X	J P. 7-267804, A (出光興産株式会社) 17. 10月. 1995 (17. 10. 95) 特許請求の範囲【0007】【0018】から【0028】段落 第1表、第2表 ファミリーなし	1-4、11、1 2、15、19、 20、23-25 27
X	J P. 4-99703, A (出光興産株式会社) 31. 3月. 1992 (31. 03. 92) 特許請求の範囲 第4頁右上欄第14行-第5頁右上欄第11行 第1表 第2表 & EP. 471284, B1 & CA. 2048951, A & US. 5234893, A & DE. 69106812, A1 & ES. 2070379, T3	1-4、15、 16、24、25
X	J P. 4-95004, A (出光興産株式会社) 27. 3月. 1992 (27. 03. 92) 特許請求の範囲 第4頁左上欄第14行-右上欄第9行 第1表、第2表 & EP. 471221, B1 & DE. 69109399, A1 & ES. 2074611, T3	1-4、21、 22、27
X	J P. 4-89409, A (出光興産株式会社) 23. 3月. 1992 (23. 03. 92) 特許請求の範囲 第4頁左上欄第14行-左下欄第10行 第1表、第2表 & EP. 469406, B1 & CA. 2048209, A & US. 5344810, A & DE. 69116460, A1 & ES. 2084735, T3	1-4、9-12 23
A	J P. 3-261703, A (北興化学工業株式会社) 21. 11月. 1991 (21. 11. 91) 特許請求の範囲、第1表から第3表 ファミリーなし	1-27

